

**Untersuchungen zum Feldaufbau
bei Raman- und Hyper-Raman-Effekt**

**Dissertation der Fakultät für Physik
Ludwig-Maximilians-Universität
München**

vorgelegt von

**Hans-Georg von Garßen
aus Göttingen**

München, den 18. Juni 1986

1. Gutachter: Dr. habil. P. Meystre
2. Gutachter: Prof. Dr. H. Wolter

Tag der mündlichen Prüfung: 31. Juli 1986

Zusammenfassung

Zunächst wird ein einfaches systematisches Verfahren vorgestellt, mit dem sich die Dynamik atomarer Mehrniveausysteme unter der Einwirkung ein oder mehrerer optischer Felder auch im Bereich von Sättigungserscheinungen störungstheoretisch beschreiben läßt. Damit werden dann semiklassische Dichtematrixgleichungen für Hyper-Raman-Effekt und Vierwellenmischung hergeleitet, die auch den Bereich zweiphotonenresonanter Anregung korrekt erfassen. In diesem Zusammenhang wird auch der Einfluß von Termen höherer störungstheoretischer Ordnung diskutiert. Die erhaltenen Gleichungen werden dann zur Beschreibung der Hyper-Raman-Streuung herangezogen, wie man sie bei Laser-Pulsanregung von Metalledämpfen in realen experimentellen Anordnungen beobachten kann. Unter anderem wird die Kleinsignalverstärkung eines klassischen monochromatischen Stokesfeldes berechnet. Ferner wird gezeigt, wie diese Kleinsignalverstärkung im quasistationären Grenzfall durch den Einfluß eines bereits vorhandenen sättigenden Feldes gleicher oder anderer Frequenz modifiziert wird. Für eine theoretische Simulation dieser nichtlinearen Prozesse benötigt man — wie auch für die Frage nach Absolutwerten der spektralen Leistungsdichte — die Kenntnis der Gewichte aller Frequenzkomponenten des Stokesfeldes.

Für die spontan entstehenden Stokesfelder, mit denen man es bei den erwähnten Experimenten zu tun hat, erfordert dies eine voll quantenmechanische Behandlung von Atomen und Strahlungsfeld, die den Kern der vorliegenden Arbeit ausmacht. Da sich die entsprechenden Gleichungen als äquivalent erweisen, umfaßt die vorliegende Behandlung sowohl den gewöhnlichen als auch den Hyper-Raman-Effekt. Dabei genügt es zunächst, sich auf den Beginn des Verstärkungsprozesses zu beschränken, in dem das Stokesfeld noch so klein ist, daß die Gleichungen hinsichtlich des Stokesfeldes linear sind.

Als erstes wird hier der Fall eines plötzlichen Einschaltens der Stokesverstärkung bei exakter Resonanz der Pumpstrahlung behandelt. Der Einfluß des dynamischen Starkeffekts führt dazu, daß der spontane Feldaufbau nicht mehr durch modifizierte Besselfunktionen bestimmt ist, wie sie bei allen bisher untersuchten linear verstärkenden Systemen auftraten. Man bekommt es vielmehr mit einer neuen Klasse von Funktionen zu tun, deren Eigenschaften untersucht werden. Physikalisch äußern sich diese Eigenschaften beispielsweise in Oszillationen der Stokesintensität,

die nach Beginn des Verstärkungsvorganges den ansonsten fast exponentiellen Anstieg überlagern. Das zeitabhängige Spektrum hat unmittelbar nach Beginn des Verstärkungsprozesses Lorentzform, bildet aber später die typische Starkaufspaltung aus. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung für die in einer definierten Zeitspanne insgesamt erzeugte Stokesenergie verbreitert sich nicht nur — wie in den bisher bekannten Fällen — durch Relaxationsprozesse, sondern auch durch Rabioszillationen während dieser Zeitspanne.

Im weiteren Verlauf der Arbeit gelingt es, das stationäre Stokesspektrum bei beliebiger Verstimmung der Pumpstrahlung durch eine analytische Formel auszudrücken. Man erhält einen exponentiellen Anstieg für die spektrale Dichte, der mit dem aus semiklassischen Rechnungen verglichen wird.

Im letzten Teil der Arbeit werden die für den oberen Teil des linearen Verstärkungsbereichs erhaltenen Stokesfelder als Startwerte für Computersimulationsrechnungen im nichtlinearen Bereich benutzt. Für den stationären Zustand wird auf diese Weise der Einfluß der nichtlinearen Prozesse auf Intensität, Spektrum, Intensitäts- und Energiestatistik des Stokeslichts untersucht. Insbesondere fällt dabei das Auftreten hoher Spikes ins Auge. Die Ergebnisse werden mit vereinfachten Modellen verglichen, die die kohärente Wechselwirkung verschiedener Frequenzkomponenten des Stokesfeldes vernachlässigen. Vergleichsweise gute Übereinstimmung erhält man für die atomaren Dichtematrixelemente und die gesamte Stokesintensität; für das Spektrum ist die Übereinstimmung sehr viel schlechter und die Spikes werden vom vereinfachten Modell überhaupt nicht mehr erfaßt.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
Kapitel 1 Die Wechselwirkung ein oder mehrerer klassischer optischer Felder mit Mehrniveausystemen	3
1.1 Dichtematrixgleichungen und bisher bekannte Lösungsansätze	3
1.2 Der vollständig störungstheoretische Lösungsansatz und seine Problematik	6
1.3 Eine systematische Methode zur partiellen Störungsrechnung	9
1.4 Verallgemeinerung des Verfahrens auf beliebige Polarisationen	13
1.5 Anwendung auf ein Zweiniveausystem im monochromatischen Feld	14
Kapitel 2 Aufstellung semiklassischer Gleichungen für Hyper-Raman-Effekt und parametrische Mischprozesse	16
2.1 Ausgangssituation und frühere Arbeiten	16
2.2 Anwendung der systematischen Methode zur partiellen Störungsrechnung auf den Hyper-Raman-Effekt	18
2.3 Einbeziehung eines parametrisch erzeugten Idlerfeldes	24
2.4 Die Ausgangsdaten einer quantitativen Beschreibung von Hyper-Raman-Effekt und Vierwellenmischung für zwei konkrete experimentelle Anordnungen	25
2.5 Werte für die Koeffizienten des Gleichungssystems von Hyper-Raman-Effekt und Vierwellenmischung bis zu höheren Ordnungen der partiellen Störungsrechnung	28
Kapitel 3 Anwendung der semiklassischen Gleichungen auf experimentelle Anordnungen mit Pulsanregung	30
3.1 Feldausbreitung unter Berücksichtigung der Anfangsbedingungen	30
3.2 Zahlenwerte für rauschäquivalente Eingangsfelder	32
3.3 Zeitliche Entwicklung von Besetzungszahlen und Zweiphotonenkohärenz am Anfang des aktiven Mediums	34
3.4 Verstärkungscharakteristik am Anfang des aktiven Mediums	39
3.5 Sättigungserscheinungen bei größeren Verstärkerlängen	43

Kapitel 4	Die Wirkung einer einzelnen sättigenden Stokesfeld-Frequenzkomponente auf Raman- bzw. Hyper-Raman-Verstärkung	44
4.1	Problemstellung und Lösungsansätze bei Zweiniveausystemen	44
4.2	Verallgemeinerung auf effektive Dreiniveausysteme	45
4.3	Ergebnisse	47
Kapitel 5	Wechselwirkung quantisierter Strahlungsfelder mit Mehrniveausystemen	52
5.1	Einfluß der Strahlungsfelder auf ein einzelnes isoliertes Mehrniveausystem	52
5.2	Einbeziehung von Relaxationsprozessen	55
5.3	Feldausbreitung	57
Kapitel 6	Voll quantenmechanische Beschreibung von Raman- und Hyper-Raman-Effekt für kleine Stokesfelder	58
6.1	Eindimensionale Kontinuumsbeschreibung für Raman- und Hyper-Raman-Effekt	58
6.2	Näherung für kleine Stokesfelder	64
6.3	Vergleich mit anderen Arbeiten über spontan initiierte Feldaufbauprozesse	66
6.4	Bestimmung der Laplacetransformierten der bei Raman- und Hyper-Raman-Effekt entstehenden Stokesfelder	69
Kapitel 7	Umkehrung der Laplacetransformation für den Fall $\Delta = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle = 0$	72
7.1	Rücktransformation durch Potenzreihenentwicklung	74
7.2	Asymptotische Darstellung der Rücktransformierten durch Sattelpunktsintegration für den Fall $c > \frac{1}{2}\sqrt{az}$	76
7.3	Asymptotische Darstellung der Rücktransformierten durch Sattelpunktsintegration für den Fall $c < \frac{1}{2}\sqrt{az}$	79
7.4	Numerische Laplace-Rücktransformation	81

Kapitel 8	Berechnung von Intensität und Spektrum für $\Delta = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle = 0$	84
8.1	Entwicklung der Stokesintensität nach dem Einschalten der Verstärkung	85
8.2	Definition stationärer und zeitabhängiger Leistungsspektren	90
8.3	Das Stokesspektrum im stationären Fall	92
8.4	Berechnung des zeitabhängigen Spektrums für den Anschwingvorgang des Stokesfeldes	95
8.5	Energiefluktuationen des stationären Stokesfeldes	98
Kapitel 9	Die Umkehrung der Laplacetransformation im allgemeinen Fall	103
9.1	Die spektrale Leistungsdichte des Stokesfeldes im stationären Fall	106
9.2	Einschränkende Bedingungen für die Phasenrelaxationskoeffizienten	109
9.3	Simulation stationärer Stokesfelder mit Zufallszahlen	112
Kapitel 10	Verstärkung stationärer Stokesfelder unter dem Einfluß von Sättigungserscheinungen	114
10.1	Die Erwartungswerte der atomaren Operatoren $\hat{\sigma}_{11}$, $\hat{\sigma}_{22}$, $\hat{\sigma}_{33}$, $\hat{\sigma}_{21}$ für den stationären Zustand in Abhängigkeit von der dimensionslosen Verstärkerlänge $\kappa z / \gamma_{ph}$	117
10.2	Der Erwartungswert für die Intensität der Stokesstrahlung im stationären Fall in Abhängigkeit von $\kappa z / \gamma_{ph}$	117
10.3	Die spektrale Leistungsdichte des Stokesfeldes im stationären Fall	118
10.4	Intensitäts- und Energieverteilungen im nichtlinearen Bereich	121
Kapitel 11	Vereinfachte Modelle für die nichtlineare Stokesverstärkung	125
11.1	Benutzte Näherung	125
11.2	Rechnung für ein monochromatisches Stokesfeld	127
11.3	Vereinfachtes Modell für die Koexistenz mehrerer Stokesfrequenzen	131
Schlußbemerkungen und Ausblick		135
Referenzen		138



Digitized by the Internet Archive
in 2026

Einleitung

Die Entwicklung leistungsstarker abstimmbarer Laser hat es möglich gemacht, optische Übergänge in Gasen und Metaldämpfen durch annähernd resonante Einstrahlung bis zur Sättigung anzuregen. Beim Raman-Effekt geht nun ein durch einen Einphotonenübergang, beim Hyper-Raman-Effekt ein durch einen Zweiphotonenübergang angeregter Zustand unter Emission eines Stokesquants in einen dritten Zustand über, der energetisch zwischen dem angeregten Zustand und dem Grundzustand des Systems liegt. Wegen der damit verbundenen Frequenzumsetzung werden derartige Prozesse als kohärente Strahlungsquelle für ansonsten schwer zugängliche Spektralbereiche, vor allem im Infraroten, in Betracht gezogen. Von daher resultiert ein lebhaftes Interesse vor allem an einem Verständnis der spektralen Eigenschaften des Stokeslichtes. Der spektralen Bandbreite und der Durchstimmpbarkeit der erzeugten Strahlung kommt nämlich bei der Beurteilung möglicher Anwendungen eine entscheidende Rolle zu.

Ein etwas anders gelagertes Interesse gilt der Stokesstrahlung in ihrer Rolle als Sondierungsinstrument für die Eigenschaften des angeregten Pumpüberganges. Eine ganze Reihe diesbezüglicher Kenngrößen läßt sich über die Registrierung der Stokesstrahlung messen. So zeigt das Stokeslicht beispielsweise die Wirkung der durch den dynamischen Starkeffekt bedingten Niveaufenspaltung sehr viel direkter an, als man sie aus Absorption oder Dispersion des Pumplichts entnehmen könnte.

Von einem anderen, stärker theoretisch orientierten Gesichtspunkt aus interessiert ein gepumptes Raman- oder Hyper-Raman-System, in das von außen kein Stokeslicht eingestrahlt wird, als Beispiel für ein instabiles makroskopisches Quantensystem. Das hier vorliegende Quantensystem verläßt nach einem durch mikroskopische Fluktuationen bestimmten Start schließlich auf einer semiklassisch beschreibbaren Trajektorie den Bereich kleiner Signale. Als Beispiele für derartige Situationen waren bisher Superfluoreszenz und nichtresonante Ramanstreuung bekannt. In beiden Fällen wird der Feldaufbau im Bereich kleiner Signale durch modifizierte Besselfunktionen bestimmt. Es liegt nahe, auch den Fall angenähert resonanter Raman- oder Hyper-Raman-Streuung zu untersuchen, was in der vorliegenden Arbeit eine neuartige Charakteristik des Feldaufbaus aufzeigt.

Eine weitere interessante Fragestellung betrifft ferner die semiklassisch beschreibbare weitere Verstärkung eines in den Bereich der Sättigung angewachsenen Stokesfeldes. Man kann hoffen, daraus einiges über die Dynamik nichtlinearer Feldausbreitung unter dem Einfluß des dynamischen Starkeffekts zu lernen. Im Fall nichtresonanter Ramanstreuung, wo der Starkeffekt keine Rolle spielt, können beispielsweise unter bestimmten Bedingungen Solitonen auftreten.

Da es eine mit der Theorie des gewöhnlichen Raman-Effekts vergleichbare Theorie des Hyper-Raman-Effekts in der bisherigen Literatur nicht gab, sind letzterem die ersten drei Kapitel der vorliegenden Arbeit gewidmet. Wir beginnen im ersten Kapitel mit einer allgemeinen Methode, mit der auch der Hyper-Raman-Effekt beschrieben werden kann. Im zweiten Kapitel werden mit dieser Methode die Gleichungen des Hyper-Raman-Effekts aufgestellt, im dritten folgen schließlich einige zahlenmäßige Abschätzungen für konkrete experimentelle Anordnungen. Am Ende dieser Betrachtungen erweisen sich die für Raman- und Hyper-Raman-Effekt erhaltenen Gleichungen als so weitgehend äquivalent, daß die beiden Erscheinungen im Rest der Arbeit gemeinsam weiter behandelt werden können.

Im vierten Kapitel wird für einen einfachen Spezialfall die nichtlineare Wechselwirkung zwischen verschiedenen Frequenzkomponenten des Stokesfeldes unter dem Einfluß des dynamischen Starkeffekts diskutiert.

Die Kapitel fünf bis neun enthalten die voll quantenmechanische Theorie von Raman- und Hyper-Raman-Effekt im Bereich kleiner Stokesfelder. Es werden sehr allgemeine Formeln für beliebige Pump-Rabifrequenzen und Verstimmungen hergeleitet. Dabei stößt man auf eine offenbar notwendige Einschränkung für die möglichen Kombinationen von Phasenrelaxationskoeffizienten, die sich auch physikalisch begründen läßt. Als Spezialfälle, in denen der Einfluß des dynamischen Starkeffekts gerade verschwindet, enthalten die hergeleiteten Formeln auch die bekannten Situationen von Superfluoreszenz und nichtresonanter Ramanstreuung.

Die beiden letzten Kapitel beschreiben Computersimulationen für Raman- oder Hyper-Raman-Effekt im Bereich intensiver, sättigender Stokesfelder. Die Ergebnisse werden diskutiert und mit vereinfachten Modellrechnungen verglichen.

1. Die Wechselwirkung ein oder mehrerer klassischer optischer Felder mit Mehrniveausystemen

1.1 Dichtematrixgleichungen und bisher bekannte Lösungsansätze

Gegenstand dieses Kapitels ist die dynamische Entwicklung eines Mehrniveausystems — im folgenden ist oft von einem Atom die Rede, obwohl es ebenso gut ein Molekül sein kann — unter der Einwirkung eines elektromagnetischen Feldes, das p verschiedene optische Frequenzen enthält. Der transversal elektrische Anteil dieses Feldes am Ort des Atoms wird in der Form angesetzt

$$E(t) = \sum_{l=1}^p \mathcal{E}_l(t) e^{-i\nu_l t} + c.c. \quad (1.1)$$

Die Koeffizienten $\mathcal{E}_l(t)$ werden als zeitlich langsam gegen die optischen Frequenzen $\nu_l, l = 1, \dots, p$ variierend vorausgesetzt. Zur Vereinfachung der Notation beschränkt man sich zunächst auf eine Polarisationsrichtung. Später wird gezeigt, wie man die Resultate gegebenenfalls verallgemeinern kann. Das ungestörte Mehrniveausystem wird im folgenden durch den Hamiltonoperator $\hat{H}_0$ repräsentiert, seine Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld durch

$$\hat{H}_I = -\hat{p} \cdot E, \quad (1.2)$$

wobei der Operator $\hat{p}$ das atomare Dipolmoment charakterisiert.¹ Bezeichnet man mit $\tilde{\rho}$ den Dichteoperator des Mehrniveausystems im Schrödingerbild, hat die Bewegungsgleichung die Form

$$\frac{d\tilde{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_0 + \hat{H}_I, \tilde{\rho}].$$

Betrachtet man die Matrixelemente zwischen den durch Indizes i, j und k gekennzeichneten Eigenzuständen des ungestörten Hamiltonoperators und kürzt mit $\omega_{ij} = [\langle i | \hat{H}_0 | i \rangle - \langle j | \hat{H}_0 | j \rangle] / \hbar$ die in Frequenzen umgerechneten Energiedifferenzen zwischen diesen Eigenzuständen ab, erhält man

$$\dot{\tilde{\rho}}_{ij} + i\omega_{ij}\tilde{\rho}_{ij} = -\frac{i}{\hbar} \left(\sum_l \mathcal{E}_l e^{-i\nu_l t} + c.c. \right) \sum_k (\tilde{\rho}_{ik}\mu_{kj} - \mu_{ik}\tilde{\rho}_{kj}). \quad (1.3)$$



Eine einfache Möglichkeit zur Berücksichtigung von Relaxationsprozessen besteht in der Einführung phänomenologischer Phasenrelaxationskoeffizienten γ_{ij} für die nichtdiagonalen Dichtematrixelemente sowie phänomenologischer Übergangswahrscheinlichkeiten vom Zustand i in den Zustand k , im folgenden mit w_{ik} bezeichnet, für die Diagonalelemente. Aus letzteren erhält man für die gesamte Zerfallszeitkonstante der Bevölkerung im Zustand i den Ausdruck $\gamma_i = \sum_k w_{ik}$. Die Dichtematrixgleichungen lauten nun

$$\begin{aligned}\dot{\tilde{\rho}}_{ij} + (i\omega_{ij} + \gamma_{ij})\tilde{\rho}_{ij} &= -\frac{i}{\hbar} \left(\sum_l \mathcal{E}_l e^{-i\nu_l t} + c.c. \right) \sum_k (\tilde{\rho}_{ik} \mu_{kj} - \mu_{ik} \tilde{\rho}_{kj}) \quad \text{für } i \neq j \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ii} + \gamma_i \tilde{\rho}_{ii} &= \sum_k \tilde{\rho}_{kk} w_{ki} - \frac{i}{\hbar} \left(\sum_l \mathcal{E}_l e^{-i\nu_l t} + c.c. \right) \sum_k (\tilde{\rho}_{ik} \mu_{ki} - \mu_{ik} \tilde{\rho}_{ki}).\end{aligned}\tag{1.4}$$

Ein Versuch, das volle Gleichungssystem direkt anschaulich zu erfassen, etwa mit einem Blochvektormodell, oder mit numerischen Methoden in dieser Form in Angriff zu nehmen, lohnt sich im allgemeinen nur bei der Untersuchung von Effekten, bei denen nur wenige atomare Niveaus eine Rolle spielen und wo man dementsprechend den Einfluß der übrigen vernachlässigen kann. Für Systeme mit nur zwei maßgeblichen Zuständen kann hier auf ausführliche Zusammenstellungen der wichtigsten Effekte verwiesen werden;^{2,3} auch über Dreiniveausysteme gibt es eine Vielzahl von Arbeiten,⁴⁻⁸ für vier Niveaus soll hier eine Rechnung erwähnt werden.¹¹ Bei der Mehrzahl der genannten Arbeiten wurden noch zusätzliche Näherungen wie die rotating-wave-approximation benutzt. Auf die speziellen Probleme im Zusammenhang mit Prozessen, die die Einbeziehung von Kontinuumszuständen erfordern, soll in diesem Zusammenhang nicht weiter eingegangen werden.

In all den anderen Fällen, in denen eine Vielzahl von Zuständen zu den beobachtbaren Effekten beiträgt, ist ein direktes Angehen der Gleichungen (1.4) jedoch zu kompliziert und verspricht wenig Einsicht in die Struktur der Lösungen. Brauchbare Ansätze, mit denen man die Fülle der Erscheinungen ordnen kann, sind hier bisher nur für wenige spezielle Situationen entwickelt worden. Als Beispiel sei die Berechnung linearer und nichtlinearer Suszeptibilitäten außerhalb des Bereichs von Resonanzen erwähnt. Hier hilft bereits eine einfache Störungstheorie, wie sie dem Buch von Hanna et al.¹² im wesentlichen zugrundeliegt. Im folgenden Abschnitt 1.2 wird darüber noch einiges gesagt werden. Ein anderes Beispiel

sind zweiphotonenresonante Übergänge in realen Atomen, soweit sie sich nicht auf einphotonenresonante Zwischenzustände stützen können. Durch geeignete unitäre Transformationen^{13,14} konnte dieses Problem auf ein Differentialgleichungssystem ähnlich den Blochgleichungen des Zweizustandssystems zurückgeführt werden. Im Prinzip sollte es nun möglich sein, auch anders gelagerte Fälle mit entsprechend modifizierten theoretischen Konzepten anzugehen und einer Lösung zuzuführen. So haben Guzman et al.¹⁵ versucht, einen mit einem intensiven Laserfeld annähernd resonanten Zweiphotonenübergang zu analysieren, dessen oberer Zustand zugleich durch ein schwächeres probe-Feld mit einem dritten Zustand gekoppelt ist. Hierzu stellen sie die maßgeblichen Dichtematrixelemente als Summe verschiedener, ihnen in diesem Zusammenhang wichtig erscheinender Frequenzkomponenten dar und betrachten die zwischen diesen Frequenzkomponenten resultierenden Beziehungen. Es geht um den Hyper-Raman-Effekt, der uns später vom zweiten Kapitel an eingehend beschäftigen wird.

Allen genannten Methoden ist das Prinzip gemeinsam, daß man für jede in einem konkreten Fall interessierende Situation heuristisch nach einem passenden mathematischen Ansatz zu suchen hat, der die physikalisch wesentlichen Elemente der betreffenden Situation korrekt erfaßt. Im allgemeinen erweist es sich jedoch dabei als sehr schwierig, diese Suche ohne eine intuitive Vorstellung von der Struktur der am Ende erwarteten Gleichungen zu beginnen. Hinzu kommt ein weiteres Problem. Damit der Umfang der Rechnung nicht zu sehr anschwillt, muß man einen Großteil der zunächst auftretenden Terme bereits in einem sehr frühen Stadium der Analyse vernachlässigen und läuft dabei Gefahr, auch für das Endergebnis wichtige Beiträge zu verlieren. Dies ist beispielsweise in der zuletzt genannten Arbeit¹⁵ passiert, wie in Abschnitt 2.2 gezeigt werden soll.

Um diese Probleme zu überwinden, wird in den folgenden Abschnitten eine einfach und universell anwendbare Methode entwickelt, die auch bei einer Vielzahl von atomaren Zuständen und beliebig vielen optischen Feldern eine korrekte und zugleich konzeptionell übersichtliche Beschreibung liefert. Vor der Anwendung dieser Methode auf eine konkrete Situation hat man lediglich einige wenige Größenabschätzungen vorzunehmen. Die sich dann anschließende eigentliche Rechnung in Gestalt einer symbolischen Einsetzungsprozedur verläuft dann derart linear und schematisch, daß man sie leicht auf dem Computer durchführen kann. Da man dabei ohne größeren Aufwand alle entstehenden Terme bis zum Schluß verfolgen

kann, ist man sicher, daß man keinen wichtigen verliert. Auch höhere Ordnungen der Störungstheorie werden so bequem zugänglich. Und wo bei den oben genannten heuristischen Verfahren oft recht mühselig für jede neue Situation auch ein neues Konzept für ihre Beschreibung gesucht werden muß, für zweiphotonenresonante Übergänge etwa das Konzept der Zweiphotonenkohärenz, springen einem hier die entscheidenden Größen bei der Betrachtung der vom Computer erzeugten Gleichungen sofort ins Auge.

Im nächsten Abschnitt wird zunächst die vollständig störungstheoretische Behandlung der Gleichungen (1.4) diskutiert. Dann wird gezeigt, wie der Versuch, die dabei auftretenden Divergenzen zu vermeiden, gerade auf die von uns vorgeschlagene Lösungsmethode führt. Diese Methode wird dann in Abschnitt 1.3 und 1.4 eingehend erläutert. Im Kapitel 2 wird sie dann auf den oben bereits erwähnten Hyper-Raman-Effekt angewandt, dessen Bewegungsgleichungen damit erstmals korrekt aufgestellt werden. Auch die zweiphotonenresonante Vierwellenmischung wird auf diese Weise behandelt.

1.2 Der vollständig störungstheoretische Lösungsansatz und seine Problematik

Bei der üblichen quantenmechanischen Methode zur Behandlung zeitabhängiger Störungen¹⁶ geht man vom dem bei verschwindendem äußeren Feld eingenommenen Grundzustand des Atoms, hier mit $|1\rangle$ bezeichnet, als Ausgangszustand nullter Ordnung aus

$$\tilde{\rho}_{ij} \Big|_{0. \text{ Näherung}} = \begin{cases} 1 & \text{für } i = j = 1 \\ 0 & \text{sonst.} \end{cases}$$

Setzt man dies auf der rechten Seite des Gleichungssystems (1.4) ein und löst nach den auf der linken Seite stehenden $\tilde{\rho}_{ij}$ auf, erhält man $\tilde{\rho}_{ij} \Big|_{1. \text{ Näherung}}$. Dies wird dann wieder rechts eingesetzt usw. und zuletzt alles aufsummiert. Diese Methode liefert für $\tilde{\rho}_{ij}$ eine über die Ordnungen $n = 0, 1, 2, 3, \dots$ zu summierende Reihe n -facher Zeitintegrale, in deren Integranden das elektrische Feld in Form von Produkten aus insgesamt n Faktoren $\mathcal{E}_l(t)$ oder $\mathcal{E}_l^*(t)$ zu verschiedenen Indices l und verschiedenen Zeiten t vorkommt. Ändert sich nun $\mathcal{E}_l(t)$ nur langsam gegenüber allen

beteiligten Relaxationsraten γ_{ij} und w_{ki} , kann man diese Produkte von Feldamplituden aus den Zeitintegralen herausziehen. Man erhält dann für $\tilde{\rho}_{ij}(t)$ eine normale Potenzreihe in $\mathcal{E}_l(t)$ und $\mathcal{E}_l^*(t)$:

$$\tilde{\rho}_{ij} = \sum \tilde{\rho}_{ij}^{(\nu)} = \sum_{n_1 \dots n_p=1}^{\infty} \sum_{m_1 \dots m_p=1}^{\infty} a_{ij}^{n_1 \dots n_p, m_1 \dots m_p} e^{-i\nu t} \prod_{l=1}^p \mathcal{E}_l^{n_l}(t) \mathcal{E}_l^{*m_l}(t) \quad (1.5)$$

Mit ν werden dabei Kombinationsfrequenzen aus den Frequenzen der anregenden Felder

$$\nu = \sum_{l=1}^p (n_l - m_l) \nu_l$$

bezeichnet, wobei die Summation in (1.5) über alle nichtnegativen ganzen Zahlen n_l, m_l , $l = 1, \dots, p$ läuft. $\tilde{\rho}_{ij}^{(\nu)}$ sind die zur Frequenz ν gehörigen Komponenten von $\tilde{\rho}_{ij}$, die sich auch in der Form $\tilde{\rho}_{ij}^{(\nu)} = \rho_{ij}^{(\nu)} e^{-i\nu t}$ mit zeitlich nur langsam variierenden Koeffizienten $\rho_{ij}^{(\nu)}$ schreiben lassen. Die vollständige Störungsrechnung der hier beschriebenen Art ist bislang im Bereich der Quantenoptik kaum benutzt worden. Bisherige Ansätze in dieser Richtung^{12,17} richteten ihr Augenmerk meist nur auf spezielle Terme der Entwicklung (1.5). Insbesondere ignorierten sie die Fortpflanzung der in niedrigeren Ordnungen Störungstheorie auftretenden Besetzungszahländerungen in die höheren Ordnungen der Störungsrechnung für die verschiedenen Dichtematrixelemente $\tilde{\rho}_{ij}$. Ein solches Vorgehen ist natürlich nur dann zulässig, wenn keine atomaren Resonanzen ins Spiel kommen. Wir wollen eine solche Beschränkung hier möglichst vermeiden, nehmen deshalb alle Terme mit und sehen, was passiert.

Brauchbar ist die oben skizzierte vollständige Störungsrechnung und insbesondere auch die Entwicklung (1.5) offenbar nur dann, wenn die Beiträge zu der sich für $\tilde{\rho}_{ij}$ ergebenden Summe mit wachsender Ordnung Störungstheorie gegen Null gehen. Wie man aus den Gleichungen (1.3) oder (1.4) sieht, multiplizieren sich im stationären Fall die einzelnen Frequenzkomponenten $\rho_{ij}^{(\nu)}$ bei jeder störungstheoretischen Iteration mit einem Faktor der Größenordnung $(\mu \mathcal{E}_l / \hbar) / (\Delta - i\gamma)$. Dabei ist $\Delta = \omega_{ij} - \nu$ die Verstimmung zwischen der jeweils betrachteten Frequenzkomponente $\tilde{\rho}_{ij}^{(\nu)}$ und der natürlichen Frequenz ω_{ij} des Dichtematrixelements $\tilde{\rho}_{ij}$. Haben nun all diese Faktoren (oder deren geometrisches Mittel entlang der Ketten von Dichtematrix-Frequenzkomponenten, über die sich die einzelnen Beiträge

im Gleichungssystem (1.4) ausbreiten) Werte $\ll 1$, konvergiert die Störungsreihe sehr schnell, so daß die Berücksichtigung weniger Glieder ausreicht. Andernfalls muß man sehr viele Glieder mitnehmen oder bekommt sogar Divergenz.

Als einfaches Beispiel soll hier ein System mit zwei Niveaus $|1\rangle$ und $|2\rangle$ angeführt werden, auf das ein einzelnes monochromatisches Feld $\mathcal{E}_1$ mit der Frequenz ν_1 einwirkt. Dabei soll die rotating-wave-Näherung zugrunde gelegt werden. Im stationären Fall führt die (innerhalb dieser Näherung) exakte Lösung des Gleichungssystems (1.4) mit der Abkürzung

$$s = \frac{|\mu_{12}\mathcal{E}_1|^2}{\hbar^2\gamma_2} \frac{\gamma_{12}^2}{\gamma_{12}^2 + (\nu_1 - \omega_{21})^2} \quad (1.6)$$

auf die Formel

$$\tilde{\rho}_{22} = \frac{s}{1 + 2s}. \quad (1.7)$$

Eine Störungsrechnung auf die oben beschriebene Weise liefert, wenn man wiederum nur die der rotating-wave-Näherung entsprechenden Terme mitnimmt, die Reihendarstellung

$$\tilde{\rho}_{22} = s - 2s^2 + 4s^3 - 8s^4 + - \dots, \quad (1.8)$$

die zwar für $|s| < \frac{1}{2}$ dieselbe Funktion darstellt, aber für $|s| \geq \frac{1}{2}$ divergiert. Wie man aus Abb. 1 sieht, geben die ersten Reihenglieder nur für $|s| < \frac{1}{4}$ eine gute Approximation.

Der Vorteil der oben skizzierten störungstheoretischen Behandlung des Gleichungssystems (1.4) liegt in der Möglichkeit, den Einfluß vieler atomarer Niveaus und vieler Frequenzkomponenten $\tilde{\rho}_{ij}^{(\nu)}$ der Dichtematrixelemente auf durchsichtige Weise in einem einfachen Summenausdruck zusammenfassen zu können. Um die Vorteile der Störungsrechnung zu nutzen, aber der oben dargestellten Gefahr zu entgehen, daß die störungstheoretischen Beiträge entlang gewisser Ketten von sukzessive zueinander beitragenden Dichtematrix-Frequenzkomponenten mit zunehmender Ordnung Störungstheorie nicht schnell genug abfallen, schlagen wir vor, diese Ketten genau bei denjenigen („fastresonanten“) Frequenzkomponenten $\tilde{\rho}_{ij}^{(\nu)}$ aufzuschneiden, deren in die Kette eingebrachte Faktoren $(\mu\mathcal{E}_i/\hbar)/(\Delta - i\gamma)$ betragsmäßig nicht als klein gegen 1 vorausgesetzt werden können. Und die Störungsrechnung auf Teilketten zwischen solchen fastresonanten Komponenten zu beschränken, um auf diese Weise die Koeffizienten eines Gleichungssystems zwischen den fastresonanten

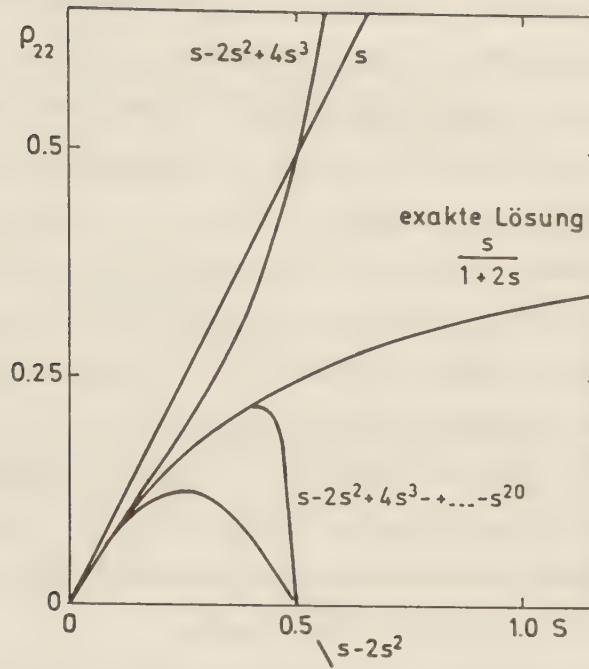


Abb. 1: Stationäre Besetzung des oberen Zustandes im Zweiniveausystem als Funktion des durch (1.6) bestimmten Anregungsparameters s . Exakte Lösung (1.7) sowie einige Approximationen durch die ersten Glieder der Störungsreihe (1.8).

$\tilde{\rho}_{ij}^{(\nu)}$ zu bestimmen. Dieses Gleichungssystem kann dann ohne weitere störungstheoretische Näherungen numerisch gelöst werden.

Man versucht also, so weit wie möglich Störungstheorie zu treiben. Nur für die wenigen Dichtematrix-Frequenzkomponenten, die dabei Anlaß zu Schwierigkeiten geben könnten, konstruiert man ein explizites Differentialgleichungssystem. In den Koeffizienten dieses Systems wäre dann der Einfluß aller übrigen Komponenten störungstheoretisch berücksichtigt.

1.3 Eine systematische Methode zur partiellen Störungsrechnung

Das elektrische Feld (1.1) ruft entsprechend den Gleichungen (1.4) in den Dichtematrixelementen verschiedene Kombinationsfrequenzen $\nu = \sum_{l=1}^P k_l \nu_l$ (k_l ganzzahlig) hervor

$$\tilde{\rho}_{ij}(t) = \sum_{\nu} \tilde{\rho}_{ij}^{(\nu)}(t) = \sum_{\nu} \rho_{ij}^{(\nu)}(t) e^{-i\nu t} \quad (1.9)$$

mit langsam variierenden Koeffizienten $\rho_{ij}^{(\nu)}(t)$. Unter all den Frequenzkomponenten $\rho_{ij}^{(\nu)}$ gilt es nun jene explizit zu benennen und auszusondern, die man nicht mittels Störungstheorie aus dem Differentialgleichungssystem (1.4) eliminieren, sondern beibehalten will. Sie werden im folgenden mit $\rho_{ij}^{(\nu, jr)}$ bezeichnet (falls von einem Dichtematrixelement $\tilde{\rho}_{ij}$ verschiedene Frequenzen ν ausgesondert werden sollen, werden diese durch den Index r unterschieden)

Zunächst wird man im allgemeinen diejenigen Frequenzkomponenten aussondern, für die $|(\omega_{ij} - \nu) - i\gamma_{ij}|$ (bzw. $|\nu - i\gamma_i|$ für $i = j$) nicht als groß gegenüber der Feld-Rabifrequenz vorausgesetzt werden kann. Bei den übrigbleibenden Komponenten kann meist davon ausgegangen werden, daß $|(\omega_{ij} - \nu) - i\gamma_{ij}|$ nicht nur groß gegen die Rabifrequenz, sondern auch gegen die Modulationsrate $|\dot{\mathcal{E}}_i/\mathcal{E}_i|$ der angelegten Felder ist. Andernfalls können die betroffenen $\rho_{ik}^{(\nu)}$ ebenfalls ausgesondert werden, so daß die Störungsrechnung für die schließlich verbleibenden Komponenten vollständig adiabatisch durchgeführt werden kann.

Es sei hier noch einmal betont, daß die Aussonderung eine Sache der rechnerischen Zweckmäßigkeit ist; sondert man mehr Elemente als nötig aus, bezahlt man am Ende mit längeren Differentialgleichungssystemen, sondert man zuwenig aus, mit unzureichender Konvergenz der Störungsentwicklung.

Um die dynamischen Beziehungen zwischen den Frequenzkomponenten $\rho_{ij}^{(\nu)}$ zu erhalten, gehen wir zur Vereinfachung der Notation von Gleichung (1.3) aus (die Relaxationsterme kann man am Schluß der Betrachtung leicht wieder hinzufügen). Setzt man auf der linken Seite von (1.3) den Ausdruck (1.9) ein und vergleicht die mit $e^{-i\nu t}$ oszillierenden Terme auf beiden Seiten, erhält man

$$\dot{\rho}_{ij}^{(\nu)} + i(\omega_{ij} - \nu)\rho_{ij}^{(\nu)} = i \left\{ -\frac{1}{\hbar} \left(\sum_l \mathcal{E}_l e^{-i\nu_l t} + c.c. \right) \sum_k (\tilde{\rho}_{ik} \mu_{kj} - \mu_{ik} \tilde{\rho}_{kj}) \right\}^{(\nu)}, \quad (1.10)$$

und wenn man für die nicht als fastresonant ausgesonderten Dichtematrix-Frequenzkomponenten die adiabatische Näherung benutzt

$$\rho_{ij}^{(\nu)} = \frac{1}{\omega_{ij} - \nu} \left\{ -\frac{1}{\hbar} \left(\sum_l \mathcal{E}_l e^{-i\nu_l t} + c.c. \right) \sum_k (\tilde{\rho}_{ik} \mu_{kj} - \mu_{ik} \tilde{\rho}_{kj}) \right\}^{(\nu)}. \quad (1.11)$$

Um die in beiden Formeln auftretende geschweifte Klammer auszuwerten, betrachtet man zunächst den ersten Ausdruck $\tilde{\rho}_{ik} \mu_{kj}$ in der hinteren runden Klammer. Für

alle k , für die $\mu_{kj} \neq 0$ ist, bekommt man mit dem ersten Ausdruck $\mathcal{E}_l e^{-i\nu_l t}$ der vorderen Klammer für jedes l jeweils einen Beitrag

$$\left\{ -\frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_l e^{-i\nu_l t} \tilde{\rho}_{ik} \mu_{kj} \right\}^{(\nu)} = \left\{ -\frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_l e^{-i\nu_l t} \tilde{\rho}_{ik}^{(\nu-\nu_l)} \mu_{kj} \right\}^{(\nu)} = -\frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_l \rho_{ik}^{(\nu-\nu_l)} \mu_{kj}, \quad (1.12a)$$

entsprechend mit dem zweiten Ausdruck in der vorderen Klammer

$$\left\{ -\frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_l^* e^{-i\nu_l t} \tilde{\rho}_{ik} \mu_{kj} \right\}^{(\nu)} = \left\{ -\frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_l^* e^{-i\nu_l t} \tilde{\rho}_{ik}^{(\nu+\nu_l)} \mu_{kj} \right\}^{(\nu)} = -\frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_l^* \rho_{ik}^{(\nu+\nu_l)} \mu_{kj}. \quad (1.12b)$$

Nun betrachtet man in analoger Weise den zweiten Ausdruck $\mu_{ik} \tilde{\rho}_{kj}$ in der hinteren runden Klammer. Für alle k , für die $\mu_{ik} \neq 0$ ist, bekommt man für jedes l die beiden Beiträge

$$\frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_l \mu_{ik} \rho_{kj}^{(\nu-\nu_l)} \quad (1.12c)$$

und

$$\frac{1}{\hbar} \mathcal{E}_l^* \mu_{ik} \rho_{kj}^{(\nu+\nu_l)}. \quad (1.12d)$$

Bei unserer Methode geht es nun darum, ein Gleichungssystem zwischen den ausgesonderten fastresonanten Frequenzkomponenten aufzustellen. Dies heißt, jede einzelne dieser Frequenzkomponenten $\rho_{mn}^{(\nu_{mnr})}$ wiederum durch Frequenzkomponenten $\rho_{m'n'}^{(\nu_{m'n'r'})}$ aus dem Kreis der ausgesonderten fastresonanten Frequenzkomponenten auszudrücken.

Um eine solche Gleichung für eine bestimmte ausgesonderte fastresonante Frequenzkomponente $\rho_{mn}^{(\nu_{mnr})}$ konkret zu erhalten, setzt man $\rho_{mn}^{(\nu_{mnr})}$ für $\rho_{ij}^{(\nu)}$ in die linke Seite von Gleichung (1.10) ein. Für jeden der dann auf der rechten Seite erhaltenen Beiträge (1.12a-d) bei allen möglichen k und $l = 1, \dots, p$ wird überprüft, ob die darin vorkommende Dichtematrix-Frequenzkomponente eine der ausgesonderten fastresonanten $\rho_{m'n'}^{(\nu_{m'n'r'})}$ ist. Wenn ja, kann der Beitrag definitiv in die letztendlich gesuchte Gleichung zwischen den $\rho_{mn}^{(\nu_{mnr})}$ hineingeschrieben werden:

$$\rho_{mn}^{(\nu_{mnr})} + i(\omega_{mn} - \nu_{mnr})\rho_{mn}^{(\nu_{mnr})} = \dots + \{\text{Faktor}\} \cdot \rho_{m'n'}^{(\nu_{m'n'r'})}. \quad (1.13)$$

Ist das nicht der Fall, drückt man die erhaltene Dichtematrix-Frequenzkomponente entsprechend Gleichung (1.11) wiederum durch Produkte aus Rabi-Frequenzen und anderen Dichtematrix-Frequenzkomponenten aus. Wieder überprüft man für jeden

der nun erhaltenen Beiträge, ob die darin vorkommende Dichtematrix-Frequenzkomponente eine der ausgesonderten fastresonanten $\rho_{m'n',n'r'}^{(\nu_{m'n',n'r'})}$ ist. Wenn ja, wird der Beitrag mitsamt den aus früheren Schritten angesammelten Vorfaktoren zur Gleichung (1.13) hinzugeschrieben. Andernfalls wiederholt man für diese Dichtematrix-Frequenzkomponente exakt die von Beginn dieses Absatzes an beschriebene Prozedur, drückt sie also entsprechend Gleichung (1.11) aus und iteriert dieses Verfahren.

Da mit jedem Iterationsschritt ein neuer Faktor $\mathcal{E}_l$ bzw. $\mathcal{E}_l^*$ vor alle nicht schon vorher definitiv in die Gleichung (1.13) hineingeschriebenen Dichtematrix-Frequenzkomponenten tritt, erhält man mit der beschriebenen Prozedur eine Entwicklung der Kopplungskoeffizienten zwischen den $\rho_{mn}^{(\nu_{mn})}$ nach aufsteigenden Potenzen von $\mathcal{E}_l$ bzw. $\mathcal{E}_l^*$:

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{mn}^{(\nu_{mn})} + i(\omega_{mn} - \nu_{mn})\rho_{mn}^{(\nu_{mn})} \\ = \sum_{m'n'r'} \left(\sum_M \sum_{\lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_M} c_{M \lambda_1 \dots \lambda_M} \mathcal{E}'_{\lambda_1} \dots \mathcal{E}'_{\lambda_M} \right) \rho_{m'n',n'r'}^{(\nu_{m'n',n'r'})}. \end{aligned} \quad (1.14)$$

Summiert wird zunächst über die Größe M , die angibt, beim wievielten Iterationsschritt die betreffenden Terme in den Kopplungskoeffizienten auftauchen. Für jedes M können die Indexgrößen λ_i , $i = 1, 2, \dots, M$ jeweils all die Werte $\lambda_i = \pm 1, \pm 2, \dots, \pm p$ annehmen. Die Größen $\mathcal{E}'_{\lambda_i}$ sind dabei in der Form definiert

$$\mathcal{E}'_{\lambda_i} = \begin{cases} \mathcal{E}_{\lambda_i} & \text{für } \lambda_i > 0; \\ \mathcal{E}_{|\lambda_i|}^* & \text{für } \lambda_i < 0. \end{cases}$$

Praktisch bricht man den beschriebenen Algorithmus nach einer vorgegebenen Anzahl M von Schritten ab und läßt die bis dahin nicht durch $\rho_{m'n',n'r'}^{(\nu_{m'n',n'r'})}$ ausgedrückten Terme weg. Dies entspricht dann einer Störungsrechnung M -ter Ordnung für die Koeffizienten zwischen den $\rho_{mn}^{(\nu_{mn})}$. Bedenkt man, daß sich die Zahl der einzelnen Beiträge bei N Niveaus und p Feldern bei jedem Schritt höchstens um einen Faktor $4pN$ vergrößern kann und daß die nach dem M -ten Schritt vernachlässigten Dichtematrix-Frequenzkomponenten betragsmäßig nicht größer als 1 sein können, erhält man als obere Schranke für den Abbruchfehler in Gleichung (1.14)

$$|\text{Fehlbeitrag zu } \dot{\rho}_{mn}^{(\nu_{mn})}| \leq \frac{4pN}{\hbar} \max_{i,j} |\mu_{ij}| \max_l |\mathcal{E}_l| \left(\frac{4pN \max_{i,j} |\mu_{ij}| \max_l |\mathcal{E}_l|}{\hbar \min_{\nu \neq \nu_{ij}} |\nu + \omega_{ij}|} \right)^{M-1}. \quad (1.15)$$

Das Minimum im Nenner erstreckt sich zunächst über alle möglichen i, j und für jedes einzelne Indexpaar i, j über alle Kombinationsfrequenzen $\nu = \sum_{l=1}^p k_l \nu_l$ (k_l ganzzahlig) mit $\sum_{l=1}^p |k_l| \leq M - 1$, die nicht zu den für das Dichtematrixelement $\tilde{\rho}_{ij}$ ausgesonderten Frequenzkomponenten ν_{ijr} gehören. Allerdings gibt die Abschätzung (1.15) insbesondere bei einer größeren Anzahl N von Niveaus leicht einen sehr viel höheren Wert, als der tatsächliche Abbruchfehler ausmacht.

Hat man das in sich abgeschlossene Gleichungssystem (1.14) gelöst, erhält man die ausgesonderten Dichtematrix-Frequenzkomponenten als Funktion der Zeit. Die übrigen Dichtematrix-Frequenzkomponenten $\rho_{mn}^{(\nu)}$ mit $\nu \neq \nu_{mn}$ lassen sich dann durch analoge Anwendung des oben geschilderten Algorithmus auf diese ausgesonderten Komponenten zurückführen. Wobei man nun im ersten Iterationsschritt den Ausdruck (1.11) benutzt mit der interessierende Komponente $\rho_{mn}^{(\nu)}$ anstelle von $\rho_{ij}^{(\nu)}$. Man erhält eine Darstellung der Form

$$\rho_{mn}^{(\nu)} = \sum_{m'n'r'} \left(\sum_M \sum_{\lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_M} c_{M \lambda_1 \dots \lambda_M}^{n m \nu m'n'r'} \mathcal{E}'_{\lambda_1} \dots \mathcal{E}'_{\lambda_M} \right) \rho_{m'n'n'r'}^{(\nu_{m'n'n'r'})}. \quad (1.16)$$

Ein Vergleich mit dem in Abschnitt 1.2 diskutierten direkten störungstheoretischen Lösungsansatz zeigt, daß die eben beschriebene Methode bei Feldfrequenzen in der Nähe von atomaren Resonanzen ein sehr viel unproblematischeres Konvergenzverhalten aufweist. Sie hat aber den Nachteil, nur die Feldabhängigkeit der Koeffizienten des Differentialgleichungssystems zwischen den $\rho_{mn}^{(\nu_{mnr})}$ unmittelbar durchsichtig zu machen, während die Feldabhängigkeit der $\rho_{mn}^{(\nu_{mnr})}$ erst nach Lösung dieses Differentialgleichungssystems erkennbar wird.

1.4 Verallgemeinerung des Verfahrens auf beliebige Polarisationen

Im Abschnitt 1.1 war von einer vorgegebenen Polarisationsrichtung für alle Frequenzkomponenten des optischen Feldes ausgegangen worden. Will man allgemeinere Fälle behandeln, muß man in den Gleichungen (1.1) bis (1.4) das elektrische Feld und seine einzelnen Frequenzkomponenten sowie das Dipolmoment und seine Matrixelemente μ_{ij} als Größen mit Vektorcharakter behandeln. Die Zerlegung (1.1) des Feldes in seine einzelnen Frequenzkomponenten schreibt sich dann

$$\vec{E}(t) = \sum_{l=1}^p \vec{\mathcal{E}}_l(t) e^{-i\nu_l t} + c.c. \quad (1.17)$$

mit zeitlich langsam variierenden vektoriellen Koeffizienten $\vec{\mathcal{E}}_l(t)$. Der Wechselwirkungs-Hamiltonoperator (1.2) tritt in Form eines Skalarprodukts $\hat{H} = -\hat{\vec{p}} \cdot \vec{E}$ in Erscheinung, ebenso die Produkte von Frequenzkomponenten des Feldes mit Dipolmatrixelementen, wie sie in Gleichung (1.3), (1.4) und (1.10) bis (1.12) auftreten. Beispielsweise erhält der Term (1.12a) nun die Form $-\hbar^{-1}(\vec{\mathcal{E}}_l \cdot \vec{\mu}_{kj})\rho_{ik}^{(\nu-\nu_l)}$. Wenn man die bei den einzelnen Iterationsschritten der Störungsrechnung gebildeten Skalarprodukte aus Frequenzkomponenten des Feldes mit Dipolmatrixelementen, im eben genannten Fall also $(\vec{\mathcal{E}}_l \cdot \vec{\mu}_{kj})$, im weiteren Verlauf der Rechnung als Einheit behandelt, ändert sich nichts an der oben für den skalaren Fall beschriebenen Algebra. Im nächsten Abschnitt werden die Ergebnisse für ein einfaches Beispiel diskutiert. Wo allerdings für die Potenzreihendarstellungen in (1.5) und (1.14) Frequenzkomponenten des Feldes und Dipolmatrixelemente getrennt werden sollen, hat man tensorielle Produkte zu verwenden. Die Situation für die Koeffizienten des Gleichungssystems bei der oben vorgeschlagenen Methode ähnelt in dieser Hinsicht der Situation für Dichtematrixelemente und Suszeptibilitäten beim vollständig störungstheoretischen Lösungsansatz. Für letztere findet man einen solchen Tensorformalismus bereits beschrieben.^{12,17}

1.5 Anwendung auf ein Zweiniveausystem im monochromatischen Feld

Als einfaches, fast triviales Anwendungsbeispiel der in den vorangegangenen Abschnitten erläuterten Methode wird zunächst ein Atom mit zwei Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ unter dem Einfluß eines Feldes

$$\vec{E}(t) = \vec{\mathcal{E}}_1(t)e^{-i\nu_1 t} + c.c.$$

mit zeitlich langsam variierender Amplitude $\vec{\mathcal{E}}_1(t)$ untersucht. Zunächst hat man diejenigen Dichtematrix-Frequenzkomponenten $\rho_{ij}^{(\nu)}$ auszusondern, für die der Ausdruck $|\nu + \omega_{ij}|$ nicht mehr als groß gegenüber den maßgeblichen Feld-Rabifrequenzen wie $2\vec{\mu}_{21} \cdot \vec{\mathcal{E}}_1/\hbar$ vorausgesetzt werden kann. Liegt die Anregungsfrequenz ν_1 in der Größenordnung der Einphotonenresonanzfrequenz ω_{21} des Zweiniveausystems, sind dies $\rho_{11}^{(0)}$, $\rho_{22}^{(0)}$, $\rho_{12}^{(\nu_1)}$ und die Konjugierte $\rho_{21}^{(-\nu_1)}$. Die in Abschnitt 1.3 und 1.4 vorgestellte Methode liefert nun, läßt man sie bis zur dritten Ordnung $M = 3$ laufen,

ganz mechanisch das Gleichungssystem

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{11}^{(0)} &= i\nu_{21}\rho_{12}^{(\nu_1)} + c.c. \\ \dot{\rho}_{22}^{(0)} &= -i\nu_{21}\rho_{12}^{(\nu_1)} + c.c. \\ \dot{\rho}_{12}^{(\nu_1)} &= i\Delta\rho_{12}^{(\nu_1)} - i\nu_{21}^*(\rho_{22}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)})\end{aligned}\quad (1.18)$$

mit den Abkürzungen

$$\begin{aligned}\Delta &= \omega_{21} - \nu_1 + \frac{|\vec{\mu}_{12} \cdot \vec{\mathcal{E}}_1|^2}{\nu_1 \hbar^2} \\ \nu_{21} &= -\frac{(\vec{\mu}_{21} \cdot \vec{\mathcal{E}}_1)}{\hbar} - \frac{(\vec{\mu}_{21} \cdot \vec{\mathcal{E}}_1)|\vec{\mu}_{12} \cdot \vec{\mathcal{E}}_1|^2}{(\nu_{21} + \nu_1)\nu_1 \hbar^3}.\end{aligned}\quad (1.19)$$

Die Gleichungen (1.18) haben offenbar dieselbe Form wie die üblichen Blochgleichungen eines Zweiniveausystems in rotating-wave-Näherung. Jedoch wird die effektive Verstimmung Δ durch einen zusätzlichen Term modifiziert, der als Bloch-Siegert-Shift^{18,2} bekannt ist. Und die Größe ν_{21} , die die halbe Rabifrequenz bezeichnet, erhält einen Zusatzterm, der den Einfluß von Dreiphotonenprozessen beschreibt. Die hier gebrauchte Vektorschreibweise läßt sofort erkennen, wie die verschiedenen Terme von der Polarisation des optischen Feldes abhängen. So kann man sich bei zirkularer Polarisation leicht Situationen überlegen, wo $\vec{\mu}_{21} \cdot \vec{\mathcal{E}}_1 \neq 0$, aber $\vec{\mu}_{12} \cdot \vec{\mathcal{E}}_1 = 0$ gilt, so daß die eben diskutierten Korrekturterme in (1.19) verschwinden.

Hat man das abgeschlossene Gleichungssystem (1.18) mit den Koeffizienten (1.19) gelöst, erhält man die ausgesonderten Dichtematrix-Frequenzkomponenten $\rho_{11}^{(0)}$, $\rho_{22}^{(0)}$, $\rho_{12}^{(\nu_1)}$ als Funktion der Zeit. Die übrigen Dichtematrix-Frequenzkomponenten wie beispielsweise $\rho_{12}^{(3\nu_1)}$, die für die Abstrahlung der dritten Harmonischen verantwortlich ist, oder $\rho_{11}^{(\nu_1)}$ folgen adiabatisch jenen Lösungen und können entsprechend Formel (1.16) als Linearkombination eben jener Lösungen dargestellt werden.

Die am Anfang von Abschnitt 1.3 genannten Kriterien sorgen dafür, daß für jede Situation die passenden Dichtematrix-Frequenzkomponenten ausgesondert werden. Liegt beispielsweise die eingestrahlte Frequenz ν_1 nicht in der Nähe der Einsondern der Dreiphotonenresonanz, hat man statt $\rho_{12}^{(\nu_1)}$ und seiner Konjugierten nun $\rho_{12}^{(3\nu_1)}$ und seine Konjugierte als fastresonant auszusondern und erhält entsprechend ein Gleichungssystem für $\rho_{11}^{(0)}$, $\rho_{22}^{(0)}$, und $\rho_{12}^{(3\nu_1)}$. Ein anderer Fall liegt vor, wenn das eingestrahlte Feld so intensiv wird, daß die Feld-Rabifrequenz $2\vec{\mu}_{21} \cdot \vec{\mathcal{E}}_1/\hbar$

unweigerlich in die Größenordnung der eingestrahlten Frequenz ν_1 kommt. Für jedes Paar i, j verletzen dann sehr viele Vielfache der Feldfrequenz ν_1 die Bedingung $|\nu + \omega_{ij}| \gg 2 \vec{\mu}_{21} \cdot \vec{\mathcal{E}}_1 / \hbar$, so daß entsprechend viele Dichtematrix-Frequenzkomponenten ausgesondert werden müssen. Man erhält dann ein riesiges Gleichungssystem für die vielen Frequenzkomponenten $\rho_{ij}^{(\nu)}$. Will man beliebig hohe Rabifrequenzen auf einen Schlag erfassen, braucht man sogar ein unendliches Gleichungssystem. Ein ähnliches unendliches Gleichungssystem, allerdings nicht für Frequenzkomponenten der Dichtematrixelemente, sondern für die Frequenzkomponenten der Koeffizienten a_1 und a_2 der Wellenfunktion $|\psi\rangle = a_1|1\rangle + a_2|2\rangle$ und auf spezielle Weise gewonnen, ist tatsächlich von Shirley¹⁹ benutzt worden, um das Zweiniveausystem im monochromatischen Feld exakt zu behandeln.

2. Aufstellung semiklassischer Gleichungen für Hyper-Raman-Effekt und parametrische Mischprozesse

2.1 Ausgangssituation und frühere Arbeiten

Unter dem Hyper-Raman-Effekt versteht man einen nichtlinearen Prozeß, bei dem ein Mehrniveausystem unter Absorption zweier Pumpphotonen und Aussendung eines Stokesphotons in einen höheren Energiezustand übergeht. Während der gewöhnliche Raman-Effekt,^{20,12,17} bei dem nur ein Pumpphoton absorbiert wird, bereits seit über fünfzig Jahren bekannt ist, wurde der Hyper-Raman-Effekt erst nach der Erfindung des Lasers entdeckt; er tauchte zunächst bei der Einstrahlung eines Rubinlasers in Wasser und Quarz als schwache spontane Linie auf.²¹ Bei neueren Experimenten mit CO₂-gepumptem Ammoniak²² und mit durch sichtbares Licht gepumpten Metaldämpfen^{23–26} konnte auch der stimulierte Effekt eingehend untersucht werden. Bei den durch sichtbares Licht gepumpten Metaldämpfen konnte durch hohe Pumpintensität und durch Abstimmung der Pumpwellenlänge in die Nähe einer Zweiphotonenresonanz eine derart hohe Effizienz erreicht werden, daß der Hyper-Raman-Effekt als Quelle für durchstimmbare kohärente Infrarotstrahlung interessant wurde. Die bisherigen Experimente liefern jedoch auf entscheidende Fragen beispielsweise nach dem Wirkungsgrad der Frequenzumsetzung oder nach dem Spektrum der erzeugten Stokesstrahlung zum Teil recht widersprüchliche Ergebnisse. Nicht zuletzt aus diesem Grund ist es nötig, theoretische Modelle zu

entwickeln, um die Abhängigkeit des Hyper-Raman-Effekts von den jeweiligen Systemparametern verstehen zu können. Eine Aufgabe, die sich zunächst als nicht ganz einfach erwies.

Von den ersten Arbeiten zu diesem Thema beschrieben die einen^{12,27} den Hyper-Raman-Effekt als reinen Dreiphotonenprozeß ohne Besetzung von Zwischenzuständen. Den Einfluß der bei den Experimenten ausgenutzten Zweiphotonenresonanz (und die damit verbundene Besetzung des oberen, in Abb. 2 und 3 mit 2 bezeichneten Niveaus) konnten sie auf diese Weise nicht erfassen. Die anderen^{11,28} versuchen, in der Umgebung jedes virtuellen Zwischenzustandes des Dreiphotonenprozesses jeweils ein reelles Niveau explizit mitzunehmen und so ein Vierniveau-Modellsystem zu konstruieren. Einfache und übersichtliche Ergebnisse erhalten sie auf diese Weise jedoch nur, wenn einer der mitgenommenen reellen Zwischenzustände ziemlich genau in der Mitte zwischen dem Grundzustand des Systems und dem anderen mitgenommenen reellen Zwischenzustand $|2\rangle$ liegt. Bei den Experimenten (siehe Abb. 2 und 3) liegt das in Frage kommende Niveau im allgemeinen zu weit von dieser Position entfernt. Dem entspricht die frequenzmäßige Trennung der Zweiphotonenresonanz von allen Einphotonenresonanzen.

Zur Überwindung dieses Dilemmas schlugen Guzman, Meystre und Sargent¹⁵ vor, von den Zwischenzuständen des Dreiphotonenprozesses nur den Zustand $|2\rangle$ mit wesentlichen Frequenzkomponenten seiner Dichtematrixelemente explizit in die Endgleichungen hineinzunehmen und den annähernd zweiphotonenresonanten Pumpvorgang mit der in Abschnitt 1.1 bereits erwähnten Theorie des Zweiphotonenüberganges^{13,14} zu behandeln. Die von ihnen erhaltenen Gleichungen ähneln formal in mancher Hinsicht den bekannten Dreiniveaugleichungen des gewöhnlichen Raman-Effekts.²⁹ Im Gegensatz zu letzteren liefern sie jedoch für die Stark-Aufspaltung einen anderen Wert als für die Rabi-Pendelfrequenz der Niveaubesetzungen. Es stellt sich schließlich heraus, daß die gefundenen Gleichungen die Ergebnisse der in Abschnitt 1.2 diskutierten direkten Störungsrechnung nicht reproduzieren, auch nicht in den Fällen, in denen diese direkte Störungsrechnung eigentlich funktionieren sollte. Um die so aufgeworfenen Fragen zu klären, soll im folgenden die in Abschnitt 1.3 entwickelte systematische Methode zur partiellen Störungsrechnung benutzt werden.

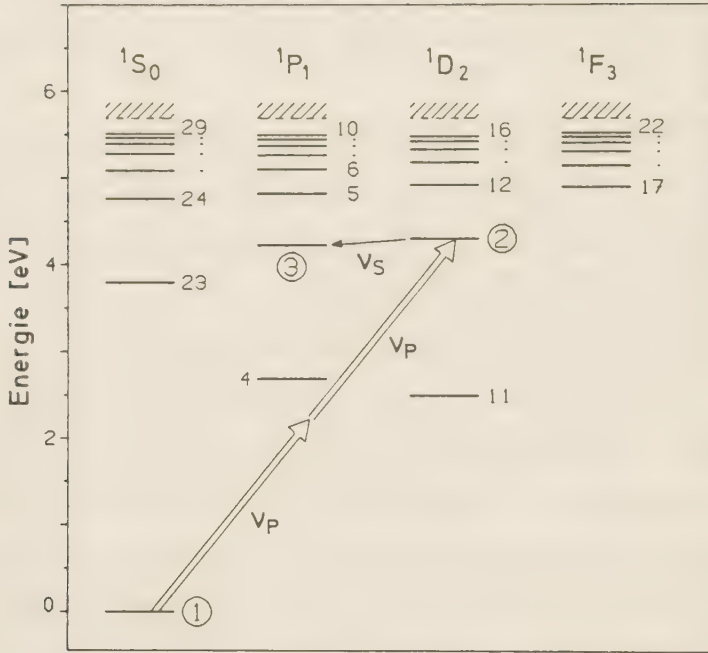


Abb. 2: Energieniveaus und benutzte Übergänge der in den Experimenten von Reif und Walther verwendeten Strontiumatome. Die Ionisationsgrenze ist schraffiert; die in unserer Rechnung berücksichtigten Niveaus werden durch die dabeistehenden Nummern von 1 bis 29 gekennzeichnet. ν_P bezeichnet die Pump-, ν_S die Stokesfrequenz. Die Verstimmungen gegen die exakte Resonanz sind so klein, daß man sie in der hier gewählten maßstabsgerechten Darstellung nicht erkennen kann.

2.2 Anwendung der systematischen Methode zur partiellen Störungsrechnung auf den Hyper-Raman-Effekt

Sind Pump- und Stokesfeld beide linear polarisiert, kann man das gesamte elektrische Feld am Ort des Atoms entsprechend der Gleichung (1.1) in der Form

$$E(t) = \mathcal{E}_P(t)e^{-i\nu_P t} + \mathcal{E}_S(t)e^{-i\nu_S t} + c.c. \quad (2.1)$$

mit langsam variierenden Koeffizienten $\mathcal{E}_P(t)$ und $\mathcal{E}_S(t)$ schreiben. Dabei gibt ν_P die Frequenz des Pump- und ν_S die Frequenz des Stokesfeldes an. Um eine anschauliche Vorstellung von den physikalischen Größenverhältnissen zu erhalten, sollen im folgenden zwei in Experimenten benutzte Hyper-Raman-Anordnungen als Beispiele herangezogen werden. In Abb. 2 ist das Niveauschema des in der Arbeit von Reif und Walther²⁵ verwendeten Strontiums dargestellt, in Abb. 3 dasjenige des

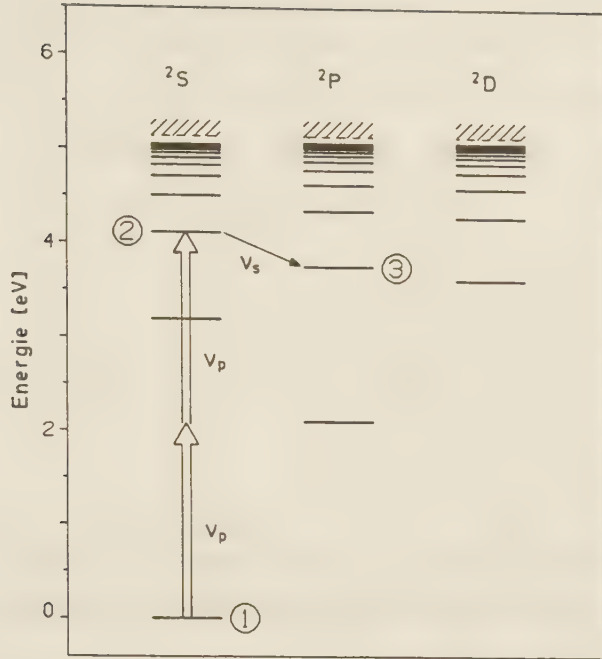


Abb. 3: Energieniveaus und benutzte Übergänge der in den Experimenten von Dinev verwendeten Natriumatome. Die 2P - und 2D -Niveaus zeigen eine Feinstrukturaufspaltung, die man in der hier gewählten maßstabsgerechten Darstellung nicht erkennen kann. In dem Zahlenbeispiel aus Abschnitt 2.2 und in den Rechnungen des Abschnitts 3.4 ist für das Endniveau $|3\rangle$ des Stokesüberganges der $^2P_{1/2}$ -Zustand zugrundegelegt. ν_p bezeichnet die Pump-, ν_s die Stokesfrequenz. Deren Verstimmungen gegen die exakte Resonanz sind klein selbst gegen die Feinstrukturaufspaltung und in Abb. 4 genauer herausgezeichnet.

Natriums, wie es von Dinev²⁶ benutzt wurde. Die Verstimmungen von Pump- und Stokesstrahlung gegen die benutzten atomaren Resonanzen werden im folgenden mit $\Delta_0 = \omega_{21} - 2\nu_p$ und $\delta_0 = \nu_s - \omega_{23}$ bezeichnet. In den genannten Experimenten sind beide Verstimmungen in der Regel klein gegen die Abstände zwischen benachbarten atomaren Niveaus; in Abb. 4 sind sie vergrößert herausgezeichnet. Sie können aber ebensowenig wie die weiter unten zahlenmäßig spezifizierten Zeitkonstanten der Relaxationsprozesse als groß gegen die Feld-Rabifrequenzen vorausgesetzt werden. Dazu sind die Felder viel zu intensiv. Nach den am Beginn von Abschnitt 1.3 genannten Kriterien hat man im hier vorliegenden Fall rein schematisch die folgenden Frequenzkomponenten von Dichtematrixelementen auszusondern:

$$\rho_{11}^{(0)}, \rho_{12}^{(-2\nu_p)}, \rho_{13}^{(-2\nu_p + \nu_s)}, \rho_{21}^{(2\nu_p)}, \rho_{22}^{(0)}, \rho_{23}^{(\nu_s)}, \rho_{31}^{(2\nu_p - \nu_s)}, \rho_{32}^{(-\nu_s)}, \rho_{33}^{(0)} \quad (2.2)$$

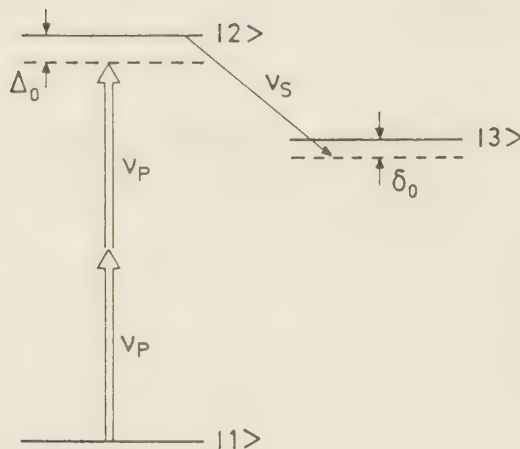


Abb. 4: Angenähert resonante Zwischen- und Endniveaus beim Hyper-Raman-Effekt; die auftretenden Verstimmungen Δ_0 und δ_0 sind stark vergrößert wiedergegeben.

sowie die zur Frequenz Null gehörigen Komponenten aller übrigen Besetzungszahlen, also

$$\rho_{44}^{(0)}, \rho_{55}^{(0)}, \rho_{66}^{(0)}, \rho_{77}^{(0)}, \dots \quad (2.3)$$

Mit dem in Abschnitt 1.3 angegebenen Verfahren werden nun die Koeffizienten des Gleichungssystems zwischen diesen ausgesonderten Dichtematrix-Frequenzkomponenten bestimmt. Die erhaltenen Koeffizienten hängen natürlich noch von den Verstimmungen Δ_0 und δ_0 ab. Diese Abhängigkeit läßt sich am einfachsten erfassen, wenn man die erhaltenen Koeffizienten um den Punkt $\Delta_0 = \delta_0 = 0$ herum in eine Potenzreihe nach Δ_0 und δ_0 entwickelt. Man erhält jeweils eine Summe der Form

$$\sum_{n_1, n_2, n_3, n_4, m_1, m_2=1}^{\infty} c_{n_1, n_2, n_3, n_4, m_1, m_2} \mathcal{E}_P^{n_1} \mathcal{E}_P^{*n_2} \mathcal{E}_S^{n_3} \mathcal{E}_S^{*n_4} \Delta_0^{m_1} \delta_0^{m_2} \quad (2.4)$$

Als Beiträge niedrigster Ordnung in Pumpfeld, Stokesfeld und Verstimmung untersuchen wir zunächst die Terme mit

$$\frac{1}{2}(n_1 + n_2) + n_3 + n_4 + m_1 + m_2 \leq 1. \quad (2.5)$$

Der Faktor $\frac{1}{2}$ trägt dem Zweiphotonencharakter der Pumpanregung Rechnung, der die Abwesenheit von Gliedern bedingt, die lediglich linear im Pumpfeld wären. Und

sorgt dafür, daß die drastischsten Effekte des Pumpfeldes mitgenommen werden. Bei der genannten Beschränkung hinsichtlich der mitgenommenen Terme erhält man, wenn man am Schluß noch die wichtigsten Relaxationsbeiträge mit den Zeitkonstanten w_{ij} , γ_i , γ_{ij} hinzufügt

$$\dot{\rho}_{11} = \sum_j w_{j1} \rho_{jj} + [i\nu_{21} \rho_{12} + \text{c.c.}] \quad (2.6a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -\gamma_2 \rho_{22} + \sum_j w_{j2} \rho_{jj} + [-i\nu_{21} \rho_{12} + i\nu_{23}^* \rho_{23} + \text{c.c.}] \quad (2.6b)$$

$$\dot{\rho}_{33} = -\gamma_3 \rho_{33} + \sum_j w_{j3} \rho_{jj} - [i\nu_{23}^* \rho_{23} + \text{c.c.}] \quad (2.6c)$$

$$\dot{\rho}_{12} = (-\gamma_{12} + i\Delta) \rho_{12} - i\nu_{21}^* (\rho_{22} - \rho_{11}) + i\nu_{23}^* \rho_{13} \quad (2.6d)$$

$$\dot{\rho}_{13} = (-\gamma_{13} + i\Delta + i\delta) \rho_{13} + i\nu_{23} \rho_{12} - i\nu_{21}^* \rho_{23} \quad (2.6e)$$

$$\dot{\rho}_{23} = (-\gamma_{23} + i\delta) \rho_{23} + i\nu_{23} (\rho_{22} - \rho_{33}) - i\nu_{21} \rho_{13} \quad (2.6f)$$

und die feldunabhängigen Ratengleichungen

$$\dot{\rho}_{ii} = -\gamma_i \rho_{ii} + \sum_j w_{ji} \rho_{jj} \quad (2.6g)$$

für die übrigen Niveaus $i = 4, 5, 6, \dots$. Unter den Ausdrücken ρ_{ij} wird hier stets die in (2.2) bzw. (2.3) aufgeführte Frequenzkomponente $\rho_{ij}^{(\nu)}$ verstanden. Da dabei zu keinem Paar von Indices i, j mehr als eine Frequenzkomponente $\rho_{ij}^{(\nu)}$ ausgesondert wurde, kann auf die explizite Angabe von ν verzichtet werden. Die halbe Feld-Rabifrequenz des Stokesüberganges ist durch

$$\nu_{23} = -\frac{1}{\hbar} \mu_{23} \mathcal{E}_s \quad (2.7)$$

gegeben. Als halbe Zweiphotonen-Rabifrequenz des Pumpfeldes tritt die Größe

$$\nu_{21} = \frac{1}{\hbar} \sum_j \frac{\mu_{2j} \mu_{j1} \mathcal{E}_P^2}{\omega_{2j} - \frac{1}{2} \omega_{21}} \quad (2.8)$$

auf, als effektive Verstimmung für Pump- und Stokesfeld

$$\begin{aligned} \Delta &= \Delta_0 + \frac{2}{\hbar} \sum_j \left(\frac{|\mu_{1j}|^2 \omega_{j1}}{\omega_{1j}^2 - \frac{1}{4} \omega_{21}^2} + \frac{|\mu_{2j}|^2 \omega_{2j}}{\omega_{2j}^2 - \frac{1}{4} \omega_{21}^2} \right) |\mathcal{E}_P|^2 \\ \delta &= \delta_0 + \frac{2}{\hbar} \sum_j \left(\frac{|\mu_{3j}|^2 \omega_{3j}}{\omega_{3j}^2 - \frac{1}{4} \omega_{21}^2} + \frac{|\mu_{2j}|^2 \omega_{j2}}{\omega_{2j}^2 - \frac{1}{4} \omega_{21}^2} \right) |\mathcal{E}_P|^2. \end{aligned} \quad (2.9)$$

In den beiden letzten Ausdrücken kommen zu den ursprünglichen Verstimmungen Δ_0 und δ_0 noch feldabhängige Terme hinzu, die die dynamische Starkverschiebung repräsentieren. Gegenüber den Gleichungen von Guzman et al.¹⁵ sieht man zwei entscheidende Unterschiede. Der erste betrifft die Kopplungskoeffizienten zwischen ρ_{13} und ρ_{23} , wie sie jeweils im letzten Term von Gleichung (2.6e) und (2.6f) stehen. Diese Kopplungskoeffizienten sind letztlich für die Aufspaltung der Hyper-Raman-Linie aufgrund des dynamischen Stark-Effekts verantwortlich. Nach der Arbeit von Guzman et al. enthalten diese Kopplungskoeffizienten lediglich den Summanden mit $j = 3$ aus Formel (2.8). Eine genauere Untersuchung zeigt, daß dieser Summand den Einfluß rascher Bevölkerungssoszillationen zwischen den Zuständen $|2\rangle$ und $|3\rangle$ mit der Frequenz $\nu_P - \nu_S$ widerspiegelt. Die von uns gefundenen Kopplungskoeffizienten sind demgegenüber durch $-i\nu_{21}^*$ bzw. $-i\nu_{21}$ gegeben, enthalten also die gesamte Summe (2.8). Eine genauere Untersuchung zeigt, daß die hinzugekommenen Terme mit gewöhnlichen Ramanübergängen zu tun haben, bei denen das Atom von Zwischenzuständen wie beispielsweise $|4\rangle$ unter Absorption eines Pump- und Emission eines Stokesphotons in den Zustand $|3\rangle$ übergeht oder umgekehrt. Quantitativ führen die neu hinzugekommenen Terme, die bei dem von Guzman et al. verwendeten heuristischen Verfahren nicht beachtet worden waren, zu neuen Werten für die genannten Kopplungskoeffizienten und damit für die Stark-Aufspaltung der Stokeslinie. In den zu Beginn dieses Abschnitts genannten Fällen unterscheiden sich diese neuen Werte von den alten um einen Faktor -13.9 für das Strontium und um einen Faktor 112 für das Natrium. Im allgemeinen kann man davon ausgehen, daß unter den im Experiment vorliegenden Bedingungen der Einfluß der bereits von Guzman et al. berücksichtigten Bevölkerungssoszillationen völlig hinter dem der jetzt neu einbezogenen Raman-Übergänge zurücktritt.

Es zeigt sich nun, daß die neu gefundenen Gleichungen für den Fall, daß alle Verstimmungen als groß gegen die Feld-Rabifrequenzen vorausgesetzt werden können, die Ergebnisse der direkten Störungsrechnung reproduzieren. Wie am Ende von Abschnitt 2.1 bemerkt, war das diesem Prinzip widersprechende Verhalten der von Guzman et al. gefundenen Gleichungen für uns ein Grund zur Nachforschung gewesen. Weiterhin erkennt man, daß die neu gefundenen Gleichungen nun genau die gleiche Form besitzen wie die bekannten Dreiniveaugleichungen²⁹ des gewöhnlichen Raman-Effekts, die man im übrigen leicht mit einem einzigen Schritt der in

Abschnitt 1.3 beschriebenen Iterationsmethode reproduzieren kann. Man hat lediglich den oben angegebenen Ausdruck (2.8) für ν_{21} durch die halbe Einphotonen-Rabifrequenz des Ramanpumpfeldes $-\frac{1}{\hbar}\mu_{21}\mathcal{E}_P$ zu ersetzen. Entsprechend sind in diesem Fall die Ausdrücke (2.9) für die effektiven Verstimmungen durch die feldstärkeunabhängigen Frequenzdifferenzen $\Delta = \omega_{21} - \nu_P$ bzw. $\delta = \nu_s - \omega_{23}$ zu ersetzen. Feldabhängige Starkverschiebungen wie in (2.9) spielen nicht mehr hinein, da sie in jedem Fall quadratisch mit dem Feld anwachsen, man sich aber beim einphotonenangeregten Ramaneffekt in der niedrigsten Ordnung auf Beiträge (2.4) mit $n_1 + n_2 + n_3 + n_4 + m_1 + m_2 \leq 1$ beschränken kann und dies in der genannten Arbeit²⁹ auch tut.

Ein zweiter wesentlicher Gewinn unserer Betrachtung des Hyper-Raman-Effekts liegt in der Klarheit, mit der sie die Voraussetzungen für die Gültigkeit des Gleichungssystems (2.6) deutlich macht. Die in der Relation (2.5) implizierte Entscheidung beispielsweise, von all den in $\mathcal{E}_P$ quadratischen Beiträgen (2.4) zu den Koeffizienten des letztendlich gesuchten Differentialgleichungssystems nur diejenigen nullter Ordnung in Δ_0 mitzunehmen, macht nur Sinn, wenn die Verstimmung Δ_0 tatsächlich klein gegen typische optische Frequenzen ist. Läßt man diese Voraussetzung fallen, verändern nicht nur die bereits in den Gleichungen (2.6) aufgeführten Koeffizienten ihre Werte; vielmehr treten auch neue Kopplungskoeffizienten auf. In erster Ordnung in Δ_0 kommen so beispielsweise zur rechten Seite der Gleichung (2.6d) für $\dot{\rho}_{12}$ die Terme

$$\begin{aligned} & \frac{i\Delta_0}{\hbar} \sum_j \left[\frac{3|\mu_{2j}|^2|\mathcal{E}_P^*|^2}{(\omega_{j2} - \frac{1}{2}\omega_{21})^2} + \frac{|\mu_{2j}|^2|\mathcal{E}_P^*|^2}{(\omega_{2j} - \frac{1}{2}\omega_{21})^2} + \frac{3|\mu_{1j}|^2|\mathcal{E}_P^*|^2}{(\omega_{1j} - \frac{1}{2}\omega_{21})^2} + \frac{|\mu_{1j}|^2|\mathcal{E}_P^*|^2}{(\omega_{j1} - \frac{1}{2}\omega_{21})^2} \right] \rho_{12} \\ & + \frac{i\Delta_0}{\hbar} \sum_j \frac{\mu_{1j}\mu_{j2}\mathcal{E}_P^{*2}}{(\omega_{2j} - \frac{1}{2}\omega_{21})^2} (\rho_{11} + \rho_{22}) + \frac{i\Delta_0}{\hbar} \sum_j \frac{\mu_{1j}\mu_{j2}\mathcal{E}_P^{*2}}{(\omega_{j1} - \frac{1}{2}\omega_{21})^2} \rho_{jj} \end{aligned} \quad (2.10)$$

neu hinzu. Bei den oben angesprochenen Dreiniveaugleichungen des gewöhnlichen Raman-Effekts findet sich hierzu keine Parallele. An den später in Abschnitt 2.5 wiedergegebenen Resultaten kann man sehen, daß sich die Ähnlichkeit der Gleichungen von Hyper- und gewöhnlichem Raman-Effekt generell auf die Terme niedrigster Ordnung (2.5) beschränkt.

2.3 Einbeziehung eines parametrisch erzeugten Idlerfeldes

Unter den Bedingungen, unter denen normalerweise Hyper-Raman-Streuung beobachtet wird, erlauben die Auswahlregeln für Dipolstrahlung auch stets die parametrische Erzeugung eines Feldes der Frequenz $2\nu_P - \nu_s$, das als Idlerfeld bezeichnet wird. Man kann diesem zusätzlichen Feld Rechnung tragen, indem man das gesamte elektrische Feld in der Form

$$E(t) = \mathcal{E}_P(t)e^{-i\nu_P t} + \mathcal{E}_s(t)e^{-i\nu_s t} + \mathcal{E}_I(t)e^{-i(2\nu_P - \nu_s)t} + c.c.$$

schreibt. Ein solcher Ansatz mit langsam variierenden Koeffizienten $\mathcal{E}_P(t)$, $\mathcal{E}_s(t)$ und $\mathcal{E}_I(t)$ erfaßt natürlich nur Idlerfelder, deren Spektrum sich tatsächlich auf eine enge Umgebung der Frequenz $2\nu_P - \nu_s$ beschränkt. Er ermöglicht eine Einbeziehung des Idlerfeldes, ohne daß dafür der Kreis der bereits beim Hyper-Raman-Effekt ausgesonderten Dichtematrix-Frequenzkomponenten (2.2–2.3) erweitert werden müßte. Mit der in Abschnitt 1.3 angeführten systematischen Methode zur partiellen Störungsrechnung kann man nun die Koeffizienten des Differentialgleichungssystems zwischen diesen ausgesonderten Dichtematrix-Frequenzkomponenten erhalten. Benutzt man wie im vorangegangenen Abschnitt eine Potenzreihenentwicklung nach Δ_0 und δ_0 , kann man diese Koeffizienten in der Form

$$\sum_{\substack{n_1, n_2, n_3, n_4, \\ n_5, n_6, m_1, m_2=1}}^{\infty} c_{n_1, n_2, n_3, n_4, n_5, n_6, m_1, m_2} \mathcal{E}_P^{n_1} \mathcal{E}_P^{*n_2} \mathcal{E}_s^{n_3} \mathcal{E}_s^{*n_4} \mathcal{E}_I^{n_5} \mathcal{E}_I^{*n_6} \Delta_0^{m_1} \delta_0^{m_2} \quad (2.11)$$

schreiben. In Analogie zum vorangegangenen Abschnitt betrachtet man in niedrigster Ordnung zunächst die Beiträge mit

$$\frac{1}{2}(n_1 + n_2) + n_3 + n_4 + n_5 + n_6 + m_1 + m_2 \leq 1. \quad (2.12)$$

Man erhält nun wiederum die Gleichungen (2.6), erweitert um Zusatzterme, die die halbe Idlerfeld-Rabifrequenz $\nu_{31} = -\frac{1}{\hbar} \mu_{31} \mathcal{E}_I$ enthalten:

$$\dot{\rho}_{11} = \sum_j w_{j1} \rho_{jj} + [i\nu_{21} \rho_{12} + i\nu_{31} \rho_{13} + c.c.] \quad (2.13a)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -\gamma_2 \rho_{22} + \sum_j w_{j2} \rho_{jj} + [-i\nu_{21} \rho_{12} + i\nu_{23}^* \rho_{23} + c.c.] \quad (2.13b)$$

$$\dot{\rho}_{33} = -\gamma_3 \rho_{33} + \sum_j w_{j3} \rho_{jj} - [i\nu_{23}^* \rho_{23} + i\nu_{31} \rho_{13} + c.c.] \quad (2.13c)$$

$$\dot{\rho}_{12} = (-\gamma_{12} + i\Delta)\rho_{12} - i\nu_{21}^*(\rho_{22} - \rho_{11}) + i\nu_{23}^*\rho_{13} - i\nu_{31}^*\rho_{23} \quad (2.13d)$$

$$\dot{\rho}_{13} = (-\gamma_{13} + i\Delta + i\delta)\rho_{13} + i\nu_{23}\rho_{12} - i\nu_{21}^*\rho_{23} - i\nu_{31}^*(\rho_{33} - \rho_{11}) \quad (2.13e)$$

$$\dot{\rho}_{23} = (-\gamma_{23} + i\delta)\rho_{23} + i\nu_{23}(\rho_{22} - \rho_{33}) - i\nu_{21}\rho_{13} + i\nu_{31}^*\rho_{12} \quad (2.13f)$$

$$\dot{\rho}_{ii} = -\gamma_2\rho_{ii} + \sum_j \omega_{ji}\rho_{jj} \quad \text{für } i = 4, 5, 6, \dots \quad (2.13g)$$

Für die hier zum Ausdruck kommende Wechselwirkung mit dem Idlerfeld gibt es beim gewöhnlichen Raman-Effekt normalerweise keine Parallele. Setzt man dort nämlich wie im vorangegangenen Abschnitt μ_{12} und μ_{23} beide $\neq 0$ voraus, verschwindet bei definierter Parität der beteiligten Zustände automatisch das Matrixelement μ_{31} .

2.4 Die Ausgangsdaten einer quantitativen Beschreibung von Hyper-Raman-Effekt und Vierwellenmischung für zwei konkrete experimentelle Anordnungen

Um eine anschauliche Vorstellung von den physikalischen Größenverhältnissen zu erhalten, werden im folgenden zwei in Experimenten benutzte Hyper-Raman-Anordnungen als Beispiele herangezogen. In der bereits zitierten Arbeit von Reif und Walther²⁵ dienen Strontiumatome als aktives Material. Ihr Niveauschema ist in Abb. 2 dargestellt. Bei dem Experiment von Dinev²⁶ wird Natrium benutzt, dessen Niveauschema in Abb. 3 wiedergegeben ist. In jedem Fall befinden sich die aktiven Atome als Dampf zusammen mit Argon als Puffergas in einer heat-pipe-Anordnung. Der Druck beträgt dabei beim Strontiumexperiment 25mbar, beim Natriumexperiment etwa 50mb. Als Pumpfeld dient ein wenige Nanosekunden langer Puls eines linear polarisierten Farbstofflasers, dessen Frequenz in der Nähe der Zweiphotonenresonanz der aktiven Atome fein eingestellt werden kann. Dabei wird das Pumpfeld von einer Seite aus in Achsrichtung in die heat pipe eingestrahlt, während auf der anderen Seite die in Vorwärtsrichtung entstehende Hyper-Raman-Streustrahlung registriert wird.

All die in diesen Experimenten auftretenden Vorgänge exakt beschreiben zu wollen, wäre eine nahezu hoffnungslos schwierige Aufgabe und soll in der vorliegenden Arbeit auch nicht versucht werden. Vielmehr geht es darum, durch vereinfachende Modellannahmen wenigstens ein gewisses Verständnis der wichtigsten

Prozesse zu ermöglichen, die zur beobachteten Infrarotstrahlung beitragen. So werden hier von der gesamten Wechselwirkung zwischen Atom und Strahlungsfeld nur jene Aspekte berücksichtigt, die sich durch das in den vorangegangenen Abschnitten entwickelte Modell beschreiben lassen. Konkurrierende Prozesse wie Mehrphotonenübergänge ins Kontinuum sowie Hyper-Raman- oder parametrische Vierwellenmischprozesse, die über andere als die in Abb. 2 und 3 mit der Nummer 3 gekennzeichneten Niveaus laufen und somit Strahlung anderer Frequenzen erzeugen, werden ignoriert. Weitere Näherungen werden im Verlauf der Arbeit noch zur Sprache kommen.

Um die in den Experimenten beobachtete Frequenzumsetzung mit dem in den vorangegangenen Abschnitten erläuterten Modell quantitativ beschreiben zu können, benötigt man zunächst die Energieeigenwerte der beteiligten Zustände der aktiven Atome sowie die Dipolmatrixelemente μ_{ij} zwischen ihnen. Die Lage der Energieniveaus entnehmen wir zunächst den NBS-Tabellen^{30,31} und für die höheren Sr-Zustände einer neueren laserspektroskopischen Arbeit.³² Ein schwierigeres Problem ist es, zuverlässige Daten für Oszillatorstärken bzw. spontane Übergangswahrscheinlichkeiten zu erhalten. Zunächst zum Strontium. Da die theoretischen Rechnungen hier mit erheblichen Unsicherheiten behaftet sind, wird soweit wie möglich auf experimentelle Werte^{33–39} zurückgegriffen. Ansonsten werden ausgefeilte semiempirische Rechnungen^{40,41} herangezogen, die von den experimentell bekannten Energieniveaus ausgehen. Für diejenigen Übergänge, für die bislang noch keine Oszillatorstärken oder Übergangswahrscheinlichkeiten publiziert sind, wurden die Dipolmatrixelemente, ebenfalls von den bekannten Energieniveaus ausgehend, mit Hilfe der Coulomb-Näherung^{42–44} berechnet. Die in den publizierten Oszillatorstärken oder Übergangswahrscheinlichkeiten nicht enthaltenen Vorzeichen der Dipolmatrixelemente μ_{ij} werden ebenfalls den Resultaten der Coulombnäherung entnommen. Etwas einfacher ist die Situation beim Natrium. Da man es nur mit einem einzelnen Leuchtelektron zu tun hat, weichen experimentelle und die theoretische Werte für Oszillatorstärken und Übergangswahrscheinlichkeiten nicht so stark voneinander ab. Auch gibt es brauchbare kritische Datensammlungen.^{31,34} Wie oben beim Strontium ausgeführt, werden ansonsten nicht bekannte Übergangswahrscheinlichkeiten oder fehlende Vorzeichen der μ_{ij} mit Hilfe der Coulombnäherung ergänzt, deren Resultate man für den Fall des Natriums auch in der Literatur⁴⁵ finden kann.

Will man das Verhalten der aktiven Atome vollständig beschreiben, hat man neben der durch die μ_{ij} beschriebenen Kopplung an das Feld auch die Wirkung von Relaxationsprozessen zu berücksichtigen. Dabei vernachlässigen wir den Einfluß von Ionisationsvorgängen und nehmen nur die nicht vom Pumpfeld induzierten Relaxationsprozesse mit. Es handelt sich dabei zum einen um spontane Strahlungsübergänge, zum anderen um die Wirkung von Stößen im Dampf. Über die Stoßbeiträge zu den in Abschnitt 1.1 definierten longitudinalen Relaxationskoeffizienten w_{ij} gibt es für die hier interessierenden Fälle kaum zuverlässige Daten. Die wenigen bekannten hierzu beitragenden Streuquerschnitte^{46–48} sind jedoch sehr klein, solange man es nicht mit Übergängen zwischen den energetisch dicht benachbarten Unterzuständen ein und desselben Multipletts⁴⁹ zu tun hat. So wird hier im folgenden für w_{ij} lediglich der Einsteinkoeffizient A_{ij} für freie spontane Strahlungsübergänge eingesetzt. Er ergibt sich aus dem Absolutquadrat der oben diskutierten Dipolmatrixelemente μ_{ij} . Stoßbedingte Übergangsraten zwischen verschiedenen Unterzuständen eines Multipletts sind bei den benutzten w_{ij} nicht berücksichtigt. Die kohärenzzerstörende Wirkung solcher Prozesse ist allerdings in den im folgenden diskutierten Phasenrelaxationskoeffizienten enthalten.

Im Gegensatz zu den bisher behandelten longitudinalen Relaxationskoeffizienten werden die ebenfalls in Abschnitt 1.1 angesprochenen Phasenrelaxationskoeffizienten γ_{ij} hauptsächlich durch Stoßprozesse bestimmt. Dabei gibt es auf der einer Seite Stöße der aktiven Atome untereinander, wobei auch elektronische Anregungsenergie ausgetauscht werden kann, ohne daß sie den aktiven Atomen verlorenggeht.^{49–52} Auf der anderen Seite gibt es Stöße der aktiven Atome mit Argonatomen. Für Strontium ist der daraus resultierende Beitrag zur Phasenrelaxation, allerdings nur für die Resonanzlinie, aus Druckverbreiterungsmessungen bekannt.^{53,54} Bei Natrium stehen Daten aus Photon-Echo-Experimenten auch für einige Übergänge zwischen höher angeregten Zuständen zur Verfügung.⁵⁵ Die vorliegenden lückenhaften Daten zeigen zwischen den Phasenrelaxationskoeffizienten der einzelnen Übergänge keine allzugroßen Differenzen, so daß wir sie im folgenden gleichsetzen. Unter den Bedingungen des Strontium-Experiments erhält man nun die Schätzung $\gamma_{12} = \gamma_{13} = \gamma_{23} = 0.5 \text{ nsec}^{-1}$ und beim Natrium-Experiment $\gamma_{12} = \gamma_{13} = \gamma_{23} = 7 \text{ nsec}^{-1}$.

2.5 Werte für die Koeffizienten des Gleichungssystems von Hyper-Raman-Effekt und Vierwellenmischung bis zu höheren Ordnungen der partiellen Störungsrechnung

Die im vorigen Abschnitt gesammelten Daten für die als Beispiel benutzten experimentellen Anordnungen in Strontium und Natrium können nun dazu verwendet werden, für diese Fälle die Koeffizienten des Differentialgleichungssystems zwischen den ausgesonderten Dichtematrix-Frequenzkomponenten (2.2–2.3) zahlenmäßig zu bestimmen. In diese Rechnung werden alle in Abb. 2 und 3 gezeigten Energieniveaus einbezogen. Um den Einfluß der höheren Terme sichtbar zu machen, wird die Abschneidegrenze für die gesuchten Beiträge (2.4) eine Stufe höher angesetzt als in (2.5) bzw. (2.12); es werden nun alle Terme mit

$$\frac{1}{2}(n_1 + n_2) + n_3 + n_4 + n_5 + n_6 + m_1 + m_2 \leq 2$$

aufgelistet. Der besseren Anschaulichkeit halber sollen Felder und Verstimmungen in den folgenden Formeln in Einheiten von typischerweise im Experiment auftretenden Feldern und Verstimmungen gemessen werden. Abweichend von der in dieser Arbeit sonst gebrauchten Notation bezeichnet $\mathcal{E}_p$ in diesen Formeln das Verhältnis der tatsächlichen Pumpfeldstärke zur Feldstärke eines Vergleichsfeldes mit einer Leistungsdichte von 10^9 W/cm². Entsprechend wird $\mathcal{E}_s$ in Einheiten eines Vergleichsfeldes mit 10^5 W/cm² und $\mathcal{E}_l$ in Einheiten eines Vergleichsfeldes von 10^4 W/cm² gemessen. Die Verstimmungen Δ_0 und δ_0 verstehen sich in Einheiten von $2\pi \cdot 60$ nsec⁻¹, was einer Wellenzahldifferenz von 2 cm⁻¹ entspricht. Der Vorteil solcher Einheiten liegt darin, daß $\mathcal{E}_p$, $\mathcal{E}_s$, $\mathcal{E}_l$, Δ_0 und δ_0 im folgenden als Zahlen der typischen Größenordnung eins auftreten. Als Beispiel geben wir die Zeitableitungen von ρ_{12} , ρ_{23} und ρ_{33} an, gemessen in nsec⁻¹:

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{12} = & i \left(-\underline{48.00} \mathcal{E}_p^{*2} + 0.000032 \mathcal{E}_p^{*2} \Delta_0 - 0.0061 \mathcal{E}_p \mathcal{E}_p^{*3} + 0.00045 \mathcal{E}_s^* \mathcal{E}_l^* \right) \rho_{11} \\ & + \left[-\underline{0.5} + i \left(\underline{376.73} \Delta_0 + \underline{208.71} |\mathcal{E}_p|^2 + 0.00031 |\mathcal{E}_p|^2 \Delta_0 + 0.0229 |\mathcal{E}_p|^4 \right. \right. \\ & \quad \left. \left. + 0.116 |\mathcal{E}_s|^2 - 0.00025 |\mathcal{E}_l|^2 \right) \right] \rho_{12} \\ & - i \left(\underline{214.42} \mathcal{E}_s^* + 0.118 |\mathcal{E}_p|^2 \mathcal{E}_s^* + 0.00127 \mathcal{E}_p^{*2} \mathcal{E}_l \right) \rho_{13} \\ & + i \left(\underline{48.00} \mathcal{E}_p^{*2} + 0.000032 \mathcal{E}_p^{*2} \Delta_0 + 0.0193 \mathcal{E}_p \mathcal{E}_p^{*3} - 0.00045 \mathcal{E}_s^* \mathcal{E}_l^* \right) \rho_{22} \\ & - 0.0133 i \mathcal{E}_p^{*2} \mathcal{E}_s^* \rho_{23} - 0.00010 i \mathcal{E}_p^{*2} \mathcal{E}_l^* \rho_{31} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & -i \left(\underline{1.60} \mathcal{E}_I^* + 0.0221 \mathcal{E}_P^{*2} \mathcal{E}_s + 0.00084 |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_I^* \right) \rho_{32} \\
 & + i \left(1.1 \times 10^{-6} \mathcal{E}_P^{*2} \Delta_0 - 0.0040 \mathcal{E}_P \mathcal{E}_P^{*3} \right) \rho_{33} \\
 & - i \left(0.000065 \mathcal{E}_P^{*2} \Delta_0 + 0.0053 \mathcal{E}_P \mathcal{E}_P^{*3} \right) \rho_{44} \\
 & + i \left(2.4 \times 10^{-7} \mathcal{E}_P^{*2} \Delta_0 - 0.00032 \mathcal{E}_P \mathcal{E}_P^{*3} \right) \rho_{55} \\
 & + 6.5 \times 10^{-8} i \mathcal{E}_P^{*2} \Delta_0 \rho_{77} + 2.1 \times 10^{-8} i \mathcal{E}_P^{*2} \Delta_0 \rho_{88} - 0.0036 i \mathcal{E}_P \mathcal{E}_P^{*3} \rho_{17 \ 17}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \dot{\rho}_{23} = & i \left(-6.1 \times 10^{-6} |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s + 0.00010 \mathcal{E}_P^2 \mathcal{E}_I^* \right) \rho_{11} - 0.0133 \mathcal{E}_P^2 \mathcal{E}_s \rho_{12} \\
 & + i \left(\underline{48.00} \mathcal{E}_P^2 + 0.000032 \mathcal{E}_P^2 \Delta_0 + 0.000063 \mathcal{E}_P^2 \delta_0 + 0.0237 \mathcal{E}_P^3 \mathcal{E}_P^* - 0.00045 \mathcal{E}_s \mathcal{E}_I \right) \rho_{13} \\
 & + i \left(\underline{1.60} \mathcal{E}_I^* + 0.0221 \mathcal{E}_P^{*2} \mathcal{E}_s + 0.00084 |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_I^* \right) \rho_{21} \\
 & - i \left(\underline{214.42} \mathcal{E}_s + 0.141 |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s + 0.00127 \mathcal{E}_P^2 \mathcal{E}_I^* \right) \rho_{22} \\
 & + \left[-\underline{0.5} + i \left(\underline{376.73} \delta_0 - \underline{312.07} |\mathcal{E}_P|^2 - 0.00024 |\mathcal{E}_P|^2 \Delta_0 + 0.00093 |\mathcal{E}_P|^2 \delta_0 \right. \right. \\
 & \quad \left. \left. - 0.126 |\mathcal{E}_P|^4 - 0.180 |\mathcal{E}_s|^2 + 0.00127 \mathcal{E}_P^2 \mathcal{E}_I^* - 0.00045 |\mathcal{E}_I|^2 \right) \right] \rho_{23} \\
 & + i \left(\underline{214.42} \mathcal{E}_s + 0.254 |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s \right) \rho_{33} + i \left(0.00517 |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s - 0.00010 \mathcal{E}_P^2 \mathcal{E}_I^* \right) \rho_{44} \\
 & + i \left(0.00165 |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s + 3.9 \times 10^{-7} \mathcal{E}_P^2 \mathcal{E}_I^* \right) \rho_{55} - 0.100 i |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s \rho_{11 \ 11} \\
 & - 0.0035 i |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s \rho_{12 \ 12} - 0.0013 i |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s \rho_{13 \ 13} + 0.0161 i |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s \rho_{17 \ 17} \\
 & + 0.0016 i |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s \rho_{18 \ 18} - 0.0233 i |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s \rho_{23 \ 23} - 0.0061 i |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s \rho_{24 \ 24} \\
 & - 0.0011 i |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s \rho_{25 \ 25}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \dot{\rho}_{33} = & \left[i \left(1.1 \times 10^{-6} \mathcal{E}_P^2 \Delta_0 - 0.0040 \mathcal{E}_P^3 \mathcal{E}_P^* \right) \rho_{12} \right. \\
 & - i \left(\underline{1.60} \mathcal{E}_I + 0.0221 \mathcal{E}_P^2 \mathcal{E}_s^* + 0.0017 |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_I \right) \rho_{13} \\
 & \left. + i \left(\underline{214.42} \mathcal{E}_s^* + 0.254 |\mathcal{E}_P|^2 \mathcal{E}_s^* + 0.0013 \mathcal{E}_P^{*2} \mathcal{E}_I \right) \rho_{23} + \text{c.c.} \right] \\
 & + \underline{0.000029} \rho_{22} - \underline{0.221} \rho_{33}
 \end{aligned}$$

Von den Kopplungskoeffizienten mit den Besetzungszahlen ρ_{ii} der nicht resonanten atomaren Zustände $i = 4, 5, \dots$ sind hierbei nur die wichtigsten aufgeführt. Die Zahlen vor all denjenigen Termen, die die Bedingung (2.12) erfüllen und die dementsprechend schon in den Gleichungen niedrigerer Ordnung (2.13) erscheinen, sind hier durch Unterstreichung hervorgehoben. Für die bei den Hyper-Raman-Experimenten als realistisch anzusehenden Felder und Verstimmungen $\mathcal{E}_P \simeq 1$, $\mathcal{E}_s \simeq 1$, $\mathcal{E}_I \simeq 1$, $\Delta \simeq 1$, $\delta \simeq 1$ sind die in höherer Ordnung Störungsrechnung hinzukommenden Terme offenbar erheblich kleiner als die feldabhängigen Terme niedrigerer Ordnung.

Sie sind jedoch nicht unbedingt kleiner als die typischen Zerfallskonstanten für die Besetzungen der einzelnen Niveaus. Dies kann unter Umständen zu einer Reihe interessanter Effekte führen. So kann die Besetzung des Zustandes $|3\rangle$ ebenso wie die der Zustände $|4\rangle$ und $|5\rangle$ durch die Kopplung von $\dot{\rho}_{33}$, $\dot{\rho}_{44}$ und $\dot{\rho}_{33}$ an ρ_{12} anwachsen, ohne daß irgendein mit diesen Niveaus resonantes Feld dazu nötig wäre. Es reicht ein positiver Imaginärteil von $\nu_{21}\rho_{12}$, wie er im stationären Zustand bei geeigneter Relaxation zwischen den Zuständen $|2\rangle$ und $|1\rangle$ beispielsweise durch ein intensives Pumpfeld $\mathcal{E}_P$ mit $\Delta = 0$ erzeugt werden kann. Im Prinzip genügen für das Zustandekommen eines solchen Effektes die beiden Endniveaus $|1\rangle$ und $|2\rangle$ des Zweiphotonenüberganges sowie ein dritter Zustand $|i\rangle$ mit zwei nichtverschwindenden Dipolmatrixelementen μ_{i2} und μ_{i1} . Solche Effekte werden hier nicht weiter diskutiert.

3. Anwendung der semiklassischen Gleichungen auf experimentelle Anordnungen mit Pulsanregung

3.1 Feldausbreitung unter Berücksichtigung der Anfangsbedingungen

Um die in Abschnitt 2.5 erläuterten Experimente vollständig beschreiben zu können, hat man neben den Bewegungsgleichungen der aktiven Atome auch die Geometrie zu berücksichtigen, die die Ausbreitung der beteiligten Felder bestimmt. Ein einfaches Modell erhält man, wenn man Pump-, Stokes- und Idlerfeld durch ebene Wellen beschreibt, die sich alle kollinear in der gleichen Richtung mit Lichtgeschwindigkeit c ausbreiten. In diese Richtung soll auch die $+z$ -Achse des im folgenden verwendeten räumlichen Koordinatensystems zeigen. Der Raum $z < 0$ wird als leer angenommen, während der Halbraum $z \geq 0$ gleichmäßig von aktiven Atomen erfüllt ist. Die hier interessierende Feldausbreitung mit Lichtgeschwindigkeit c in nur eine Richtung läßt sich besonders einfach beschreiben, wenn man neben der räumlichen Koordinate z anstelle der gewöhnlichen, für alle Raumpunkte synchron verlaufenden Zeit t die retardierte Zeit $\tau = t - z/c$ verwendet.^{2,56} Wie später in Abschnitt 6.1 für den quantenmechanischen Fall noch ausführlicher dargestellt, geht man für Felder und atomare Dipolmomente zu einer Kontinuumsbeschreibung über. Das elektrische Feld wird dann in der Form

$$E(z, \tau) = \mathcal{E}_P(z, \tau)e^{-i\nu_P\tau} + \mathcal{E}_S(z, \tau)e^{-i\nu_S\tau} + \mathcal{E}_I(z, \tau)e^{-i(2\nu_P - \nu_S)\tau} + c.c.$$

angesetzt, wobei man voraussetzt, daß die Koeffizienten $\mathcal{E}_P(z, \tau)$, $\mathcal{E}_s(z, \tau)$ und $\mathcal{E}_I(z, \tau)$ nur langsam mit z und τ variieren. Betrachtet man das Medium in Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen als optisch dünn hinsichtlich der Absorption der Pumpstrahlung, wird $\mathcal{E}_P(z, \tau) = \mathcal{E}_P(0, \tau)$ und dementsprechend $\nu_{21}(z, \tau) = \nu_{21}(0, \tau)$. Für die den Feldamplituden $\mathcal{E}_s(z, \tau)$ und $\mathcal{E}_I^*(z, \tau)$ zugeordneten halben Rabi-Frequenzen $\nu_{23}(z, \tau) = -\frac{1}{\hbar}\mu_{23}\mathcal{E}_s(z, \tau)$ und $\nu_{31}^*(z, \tau) = -\frac{1}{\hbar}\mu_{31}\mathcal{E}_I^*(z, \tau)$ geben die Maxwellgleichungen mit der slowly varying amplitude and phase approximation

$$\frac{\partial}{\partial z} \nu_{23}(z, \tau) = -i\kappa\rho_{23}(z, \tau) \quad (3.1a)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \nu_{31}^*(z, \tau) = i\kappa'\rho_{13}(z, \tau) \quad (3.1b)$$

$$\text{mit} \quad \kappa = \frac{N\nu_s|\mu_{23}|^2}{2\hbar c\epsilon_0}, \quad \kappa' = \frac{N\nu_I|\mu_{31}|^2}{2\hbar c\epsilon_0}.$$

Dabei bezeichnet N die Dichte der aktiven Atome im Medium, $\nu_I = 2\nu_P - \nu_s$ die Frequenz des Idlerfeldes. Die Bewegungsgleichungen der Atome (2.13a-g) und die Ausbreitungsgleichungen (3.1) lassen sich nun im Prinzip gemeinsam lösen. Vorausgesetzt, man kennt die Anfangsbedingungen für Atome und Felder, die im folgenden diskutiert werden sollen. Sind für $\tau \leq 0$ keine merklichen Felder vorhanden, kann man davon ausgehen, daß sich die aktiven Atome für $\tau = 0$ im Grundzustand befinden

$$\rho_{ij}(z, \tau=0) = \begin{cases} 1 & \text{für } i = j = 1 \\ 0 & \text{sonst.} \end{cases} \quad (3.2)$$

Für $\tau > 0$ wird ein Pumpimpuls mit gaußförmigem Verlauf

$$\mathcal{E}_P(z, \tau) = \mathcal{E}_{P\max} e^{-\left(\frac{\tau - \tau_{\max}}{\tau_b}\right)^2} \quad (3.3)$$

angenommen; dabei ist $\tau_{\max} = 20 \text{ nsec}$ gewählt, τ_b den in den Experimenten verwendeten Pulslängen angepaßt, mit den Werten $\tau_b = 6.1 \text{ nsec}$ für das Sr- und $\tau_b = 4.25 \text{ nsec}$ für das Na-Experiment.

Schwieriger ist die Festlegung von Anfangswerten $\mathcal{E}_s(z=0, \tau)$ und $\mathcal{E}_I(z=0, \tau)$ für Stokes- und Idlerfeld am Anfang des aktiven Mediums. In den hier behandelten Experimenten werden dort keine Stokes- und Idlerfelder eingestrahlt. Die dadurch nahegelegte Vorgabe $\mathcal{E}_s(z=0, \tau) = 0$, $\mathcal{E}_I(z=0, \tau) = 0$ ergibt jedoch auch für größere z stets verschwindende Stokes- und Idlerfelder. Die in Kapitel 2

aufgestellten semiklassischen Gleichungen können nämlich die spontane Entstehung eines Stokesfeldes nicht beschreiben, wie sie in den Experimenten beobachtet wird. Nur die Verstärkung eines bereits vorhandenen Signals durch stimulierte Emission geben sie wieder. Bereits in früheren Arbeiten^{27–28,57} ist versucht worden, mit diesem Problem im Rahmen eines phänomenologischen Ansatzes dadurch fertig zu werden, daß man die Rechnung statt mit verschwindenden Stokes- und Idlerfeldern jeweils mit heuristisch eingeführten fiktiven monochromatischen Stokes- und Idlerfeldern beginnen läßt. Im nächsten Abschnitt wird ein Ratenengleichungsansatz benutzt, um anhand der Beziehungen zwischen den für spontane und induzierte Prozesse maßgeblichen Einsteinkoeffizienten zu einer Abschätzung der benötigten Größenordnung für diese fiktiven Eingangsfelder zu kommen.

3.2 Zahlenwerte für rauschäquivalente Eingangsfelder

Wir beschränken uns hier auf den einfachen Fall, daß die Entstehung und das Wachstum des Stokesfeldes am Anfang des aktiven Mediums vollständig durch die Inversion des Stokesüberganges $\rho_{22} - \rho_{33}$ bestimmt wird. Der Einfluß der Zweiphotonenkohärenz ρ_{12} wird dabei ebenso vernachlässigt wie eine eventuelle Kopplung des Stokesfeldes an das Idlerfeld. Später gegen Ende von Abschnitt 3.4 wird gezeigt, daß dieser Ansatz unter den im Experiment herrschenden Bedingungen zumindest den Verstärkungskoeffizienten des entstehenden Stokesfeldes einigermaßen korrekt wiedergibt.

Der mit Übergängen zwischen den atomaren Niveaus $|2\rangle$ und $|3\rangle$ einhergehende Aufbau des Stokesfeldes soll nun durch eine Ratengleichung^{1,58} beschrieben werden. Im folgenden wird das Stokesfeld betrachtet, das durch eine senkrecht zur z -Achse ausgerichtete Fläche A hindurchtritt. Bezeichnet man mit $G(z, \nu)$ diejenige Stokesenergie, die am Ort z in einer Polarisationsrichtung pro Einheit der Stokes- (Winkel)frequenz ν , pro Zeiteinheit und pro Fläche A in einen Raumwinkel $\Delta\Omega$ gestrahlt wird, erhält man

$$\frac{\partial}{\partial z} G(z, \nu) = N_2 \hbar \nu A_{23}(\nu) \frac{\Delta\Omega}{8\pi} + (N_2 - N_3) B_{23}(\nu) \frac{\hbar \nu}{c} G(z, \nu)$$

Dabei stellen N_2 und N_3 die räumliche Dichte der Atome im Zustand $|2\rangle$ bzw. $|3\rangle$ dar. $A_{23}(\nu)$ und $B_{23}(\nu)$ sind die frequenzabhängigen Einsteinkoeffizienten für

spontane und induzierte Emission. Mit der bekannten Beziehung^{1,58} zwischen den Einsteinkoeffizienten lautet die Lösung

$$G(z, \nu) = \hbar\nu \frac{F^2}{A} \frac{N_2}{N_2 - N_3} \left[e^{(N_2 - N_3) B_{23}(\nu) \frac{\hbar\nu}{c} z} - 1 \right] + G(z=0, \nu) e^{(N_2 - N_3) B_{23}(\nu) \frac{\hbar\nu}{c} z} \quad (3.4)$$

Im ersten Summanden taucht hier das Quadrat der Fresnelzahl des zur untersuchten Stokesstrahlung beitragenden aktiven Volumens $F^2 = A\Delta\Omega/\lambda^2$ auf, wobei $\lambda = c/\nu$ die Wellenlänge des Stokeslichtes bezeichnet. Der erste Summand beschreibt das mit semiklassischen Rechnungen nicht erfaßbare Anschwingen des Stokesfeldes aus dem Vakuumzustand heraus. Bei genügender Größe der Exponentialausdrücke kann man den ersten Summanden weglassen, wenn man stattdessen den Faktor $G(z=0, \nu)$ vor dem zweiten, auch in semiklassischer Rechnung herauskommenden Summanden um einen fiktiven Beitrag

$$G(z=0, \nu) = \hbar\nu \frac{F^2}{A} \frac{N_2}{N_2 - N_3} \quad (3.5)$$

erhöht. Es ist dies die spektrale Dichte eines fiktiven rauschäquivalenten, klassisch betrachteten Eingangssignals. Will man das fiktive Eingangsfeld entsprechend den bereits erwähnten Vorschlägen^{27–28,57} monochromatisch wählen, liegt es nahe, seine Intensität gleich dem Produkt dieser spektralen Dichte mit der typischen Stokes-Linienbreite zu wählen. Setzt man für letztere die Phasenrelaxationskonstante γ_{ph} des Stokesüberganges ein, erhält man als fiktive Eingangsamplitude

$$\frac{|\nu_{23}(z=0)|}{\gamma_{ph}} = \sqrt{\frac{\kappa}{NA\gamma_{ph}}} \sqrt{\frac{N_2}{N_2 - N_3}} F \quad (3.6)$$

Einige grundsätzliche Bemerkungen über die Möglichkeit, den Aufbau und die weitere Entwicklung eines spontan entstandenen Stokesfeldes durch eine semiklassische Rechnung mit einem solchen Eingangsfeld zu beschreiben, folgen später in Abschnitt 3.5 und 4.3. Ein numerischer Vergleich dieser Methode mit einer voll quantenmechanischen Rechnung wird schließlich für einige stationäre Fälle in Abschnitt 11.2 vorgeführt. Die in Formel (3.6) auf der rechten Seite unter der Wurzel auftretende dimensionslose Kenngröße $\frac{\kappa}{NA\gamma_{ph}}$ hat bei den hier in Frage stehenden Experimenten einen Wert in der Größenordnung von 3.6×10^{-9} . Die beiden weiter rechts stehenden

Faktoren in (3.6) liegen demgegenüber in der Größenordnung von 1. Die auf diese Weise erhaltenen Stokes-Eingangsfelder sind so klein, daß sie unter den im Experiment herrschenden Bedingungen auch nach einer Verstärkung um einen Faktor $e^{(N_2 - N_3)B_{23}(\nu)\hbar\nu\frac{1}{c}z} \simeq 1000$ noch keine merkliche Änderung der Besetzungsdichten N_2 und N_3 hervorrufen, was bei der Ableitung der Formel (3.4) im übrigen auch schon implizit vorausgesetzt worden war. Kehrt man nun von dem in diesem Abschnitt behandelten Spezialfall zu dem im vorhergehenden Abschnitt diskutierten allgemeineren Fall zurück und nimmt sowohl Stokes- als auch Idlerfeld-Rabifrequenz in der Größenordnung (3.6) an, kommt man ganz analog zu der Feststellung, daß die von diesen Rabifrequenzen herrührenden Terme auf der rechten Seite der atomaren Gleichungen (2.13b,c,d) gegen die anderen Beiträge vernachlässigt werden können. Damit lassen sich die Besetzungszahlen der einzelnen Zustände sowie die Zweiphotonenkohärenz ρ_{12} allein aus dem Einfluß von Pumpfeld und Relaxationskonstanten berechnen.

3.3 Zeitliche Entwicklung von Besetzungszahlen und Zweiphotonenkohärenz am Anfang des aktiven Mediums

Die maßgeblichen Terme aus (2.13) genügen den Gleichungen

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{11} &= \sum_j w_{j1} \rho_{jj} + [i\nu_{21}(\tau)\rho_{12} + \text{c.c.}] \\ \dot{\rho}_{22} &= -\gamma_2 \rho_{22} + \sum_j w_{j2} \rho_{jj} - [i\nu_{21}(\tau)\rho_{12} + \text{c.c.}] \\ \dot{\rho}_{12} &= [-\gamma_{12} + i\Delta(\tau)]\rho_{12} - i\nu_{21}^*(\tau)(\rho_{22} - \rho_{11}) \\ \dot{\rho}_{ii} &= -\gamma_2 \rho_{ii} + \sum_j w_{ji} \rho_{jj} \quad \text{für } i = 3, 4, 5, \dots\end{aligned}\tag{3.7}$$

Unter den Größen $\dot{\rho}_{ij}$ sollen hier und im folgenden die Ableitungen der betreffenden Dichtematrix-Frequenzkomponenten nach der retardierten Zeit τ verstanden werden. Die Funktionen $\nu_{21}(\tau)$ und $\Delta(\tau)$ sind durch die Formeln (2.8), (2.9) und (3.3) vorgegeben. In Abb. 5–7 sind einige typische Ergebnisse der numerischen Lösung des Gleichungssystems (3.7) mit den Anfangsbedingungen (3.2) wiedergegeben. Der wesentliche Unterschied zwischen den Zeitverläufen der Besetzungszahlen ρ_{22} beim Strontium einerseits und beim Natrium andererseits geht auf das in beiden Fällen unterschiedliche Verhältnis der Phasenrelaxationskoeffizienten γ_{12} zur relativen

zeitlichen Anstiegsrate $\nu_{21}^{-1} \frac{\partial}{\partial \tau} \nu_{21}$ und $\Delta^{-1} \frac{\partial}{\partial \tau} \Delta$ der durch den Pumpimpuls bestimmten Kenngrößen $\nu_{21}(\tau)$ und $\Delta(\tau)$ zurück. Der in Abschnitt 2.5 für den Fall des Natriums genannte hohe Wert $\gamma_{12} = 7 \text{ nsec}^{-1}$ hat zur Folge, daß die Zweiphotonenkohärenz ρ_{12} in der dritten der Gleichungen (3.7) allen übrigen zeitabhängigen Größen $\nu_{21}(\tau)$, $\Delta(\tau)$, ρ_{ii} , $i = 1, 2, 3, 4, \dots$ angenähert adiabatisch folgt. Setzt man die daraus folgende Beziehung

$$\rho_{12} = \frac{i\nu_{21}^*(\tau)(\rho_{11} - \rho_{22})}{\gamma_{12} - i\Delta(\tau)} \quad (3.8)$$

in die übrigen Gleichungen ein, begreift man, daß die Lösungen einen glatten, oscillationsfreien zeitlichen Verlauf aufweisen müssen, wobei ρ_{22} niemals größer als ρ_{11} werden kann und immer kleiner als 0.5 bleibt.

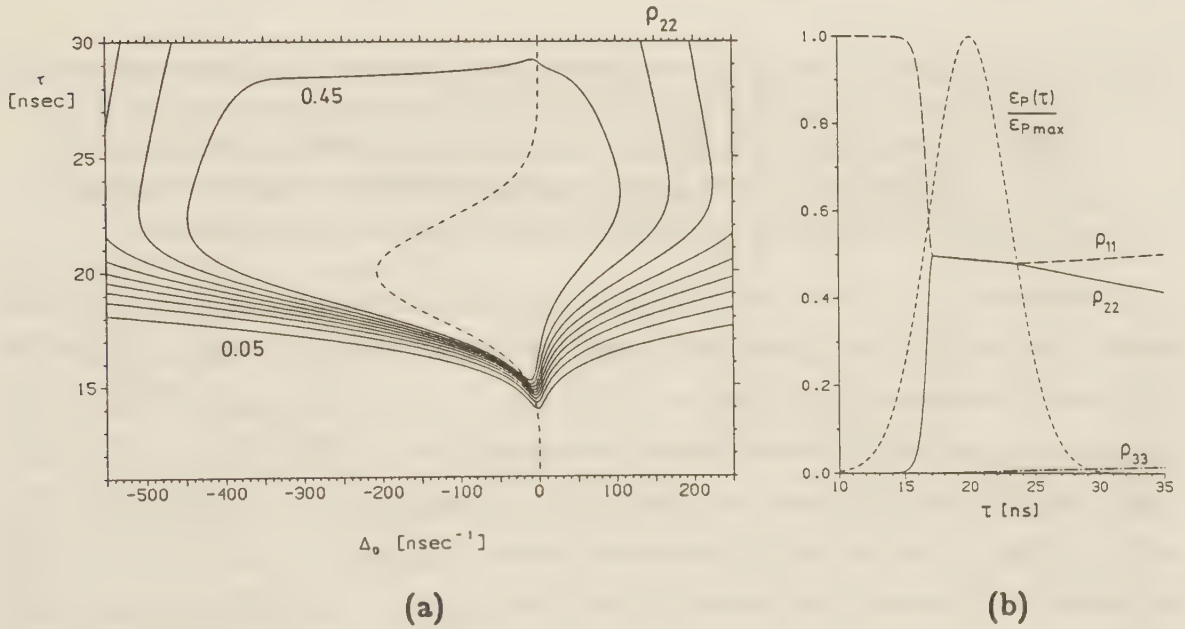


Abb. 5: Entwicklung der Besetzungszahlen beim Natrium. Das Maximum der Pumpintensität, das dem Feld $\mathcal{E}_{P\max}$ entspricht, ist hier zu $2 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ angenommen. (a) Höhenliniendiagramm für ρ_{22} ; die durchgezogenen Höhenlinien entsprechen ρ_{22} -Werten im Abstand von 0.05. Die gestrichelte Linie zeigt die pumpfeldbedingte Starkverschiebung. (b) Zeitverlauf von ρ_{11} , ρ_{22} und ρ_{33} für $\Delta_0 = -100 \text{ nsec}^{-1}$.

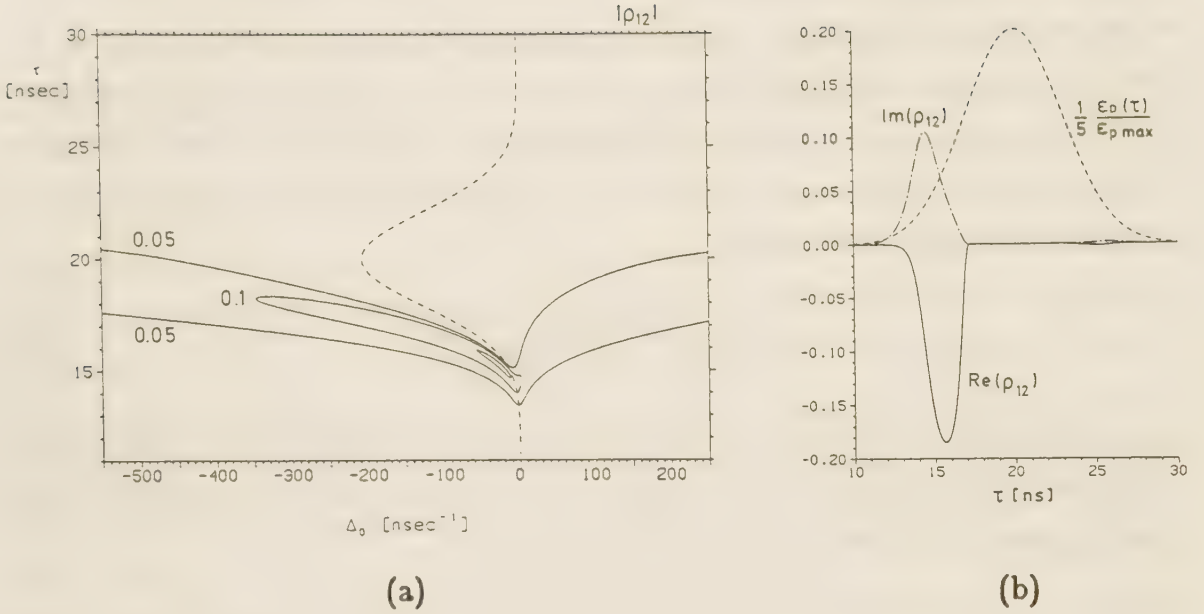


Abb. 6: Entwicklung der Zweiphotonenkohärenz beim Natrium. Das Maximum der Pumpintensität beträgt $2 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$. (a) Höhenliniendiagramm für $|\rho_{12}|$; die durchgezogenen Höhenlinien entsprechen $|\rho_{12}|$ -Werten im Abstand von 0.05. Die gestrichelte Linie zeigt die pumpfeldbedingte Starkverschiebung. (b) Zeitverlauf des Real- und Imaginärteils von ρ_{12} für $\Delta_0 = -100 \text{ nsec}^{-1}$.

Ausgehend von den in der vorliegenden Arbeit aufgestellten Gleichungen (mit der in Abschnitt 2.1 beschriebenen Vorgeschichte) sind auch von Guzman et al.^{57,59} Dichtematrixelemente sowie Stokesverstärkungen (die wir im nächsten Abschnitt diskutieren) für einige spezielle Fälle berechnet worden. Guzman et al. unterscheiden dabei einen Bereich hoher Relaxationsraten, in dem man weitgehend oszillationsfreie Lösungen erhält, von einem Bereich niedriger Relaxationsraten mit stärkeren Oszillationen. Wobei nach ihren Vorstellungen im Bereich hoher Relaxationsraten die Dichtematrixelemente in jedem Augenblick τ nahezu die Werte annehmen, die man bei stationärer Anregung mit dem zur Zeit τ herrschenden Pumpfeld erwartet. Eine solche Beschreibung scheitert im eben genannten Fall des Natriums an den im Vergleich zur inversen Pulsdauer sehr kleinen longitudinalen Relaxationskoeffizienten wie $\gamma_2 = .0126 \text{ nsec}$, $\gamma_3 = .00934 \text{ nsec}$. So findet man für die Besetzungszahlen ρ_{ii} , $i = 1, 2, 3, 4, \dots$ im Verlauf der Pulsanregung völlig andere Werte, als es irgendeinem stationärem Zustand entspräche. Die nichtdiagonalen Dichtematrixelemente können hier allerdings wegen der hohen transversalen

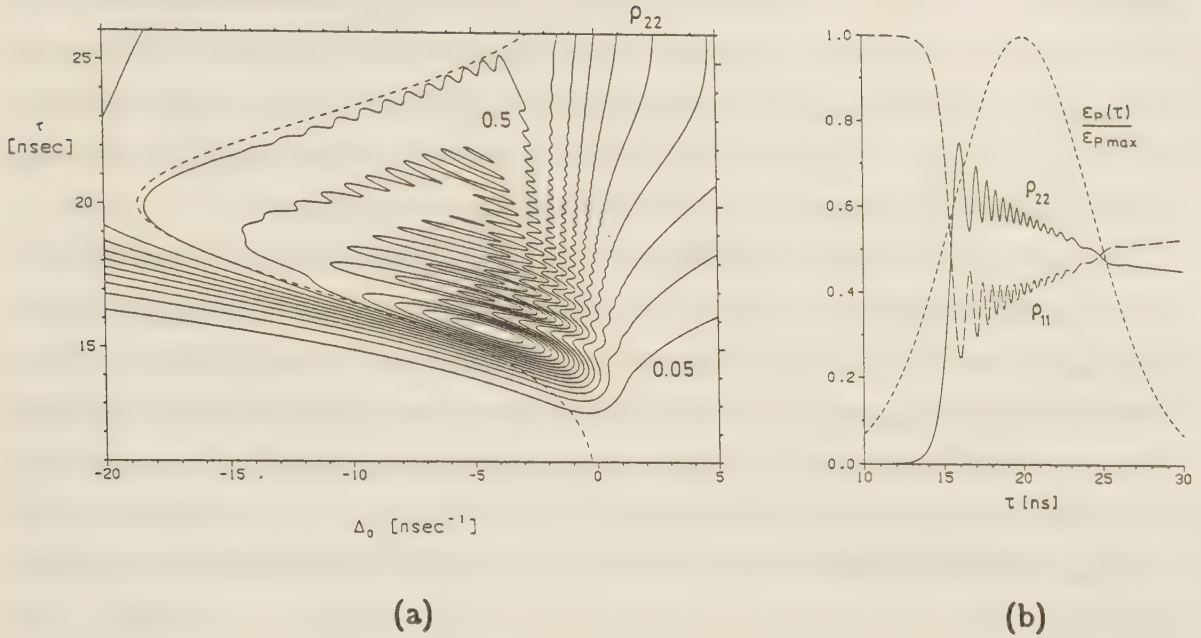


Abb. 7: Entwicklung der Besetzungszahlen beim Strontium. Das Maximum der Pumpintensität ist hier zu $9 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ angenommen. (a) Höhenliniendiagramm für ρ_{22} ; die durchgezogenen Höhenlinien entsprechen ρ_{22} -Werten im Abstand von 0.05. Die gestrichelte Linie zeigt die pumpfeldbedingte Starkverschiebung. (b) Zeitverlauf von ρ_{11} , ρ_{22} und ρ_{33} (letzteres ist praktisch Null) für $\Delta_0 = -6 \text{ nsec}^{-1}$.

Relaxationskoeffizienten adiabatisch dem Pumppulsverlauf und dem Verlauf der Besetzungszahlen ρ_{ii} folgen.

Im Fall des Strontiums ist die relative Anstiegsrate der durch das Pumpfeld bestimmten Funktionen $\nu_{21}(\tau)$ und $\Delta(\tau)$ nicht mehr klein gegen die in diesem Fall durch $\gamma_{12} = 0.5 \text{ nsec}^{-1}$ bestimmte Phasenrelaxationsrate. Es liegt im Gegenteil vielmehr nahe, während des Pulsanstiegs die Wirkung von Relaxationsprozessen vollkommen zu vernachlässigen; eine entsprechende Vergleichsrechnung ergibt hier keine großen Abweichungen. Könnte man darüber hinaus auch noch die zeitliche Veränderung der effektiven Verstimmung $\Delta(\tau)$ vernachlässigen, ließe sich die entstehende Bewegung einfach als Rotation des Blochvektors um eine feste Achse beschreiben, in Anlehnung an die bei Zweiniveausystemen bekannte freie Nutation. Für eine Situation mit kleinen Relaxationskoeffizienten ist dies in den oben genannten Arbeiten von Guzman et al.^{57,59} vorgeschlagen worden. Eine solche Beschreibung gibt jedoch nach Mittelung über die einzelnen Rabioszillationen stets eine Besetzungszahl $\rho_{22} < 0.5$ und eine negative Inversion des Pumpüberganges $\rho_{22} - \rho_{11} < 0$.

Insbesondere in Abb. 7b erkennt man jedoch, wie die Zeitabhängigkeit von $\Delta(\tau)$ zu einer während der ganzen Dauer des Pumpulses positiven Inversion führen kann. Auch kann die Besetzung des oberen Zustandes $|2\rangle$ erheblich höhere Maximalwerte erreichen, als man sie in einer Vergleichsrechnung mit irgendeiner zeitlich konstanten Verstimmung unter sonst gleichen Bedingungen bekommen kann.

Eine einfache qualitative Erklärung für diesen Effekt ergibt sich aus dem folgenden, hier nur in grober Annäherung realisierten Modell. Dabei wird die relative Anstiegsrate von $\nu_{21}(\tau)$ und $\Delta(\tau)$ zwar als groß gegen die Relaxationsraten, aber als immer noch klein gegen die typischen Rabi-Frequenzen im Bereich des Pumpulses vorausgesetzt. Womit zwei der drei wichtigsten Voraussetzungen für einen sogenannten adiabatischen schnellen Durchgang^{14,60–63} erfüllt sind. Die dritte Bedingung verlangt, daß die effektive Verstimmung $\Delta(\tau)$ sich im Zeitverlauf, von genügend negativen Werten ausgehend, zu genügend positiven Werten hin entwickelt. Die Linie, auf der sie dabei den Wert Null kreuzt, ist in Abb. 7a als gestrichelte Linie eingezeichnet. Veranschaulichen kann man sich den adiabatischen schnellen Durchgang am einfachsten mit Hilfe des Blochvektormodells. Unter den genannten Voraussetzungen bewegt sich der dort in Erscheinung tretende Drehmomentvektor aus seiner ursprünglichen Abwärtsrichtung (entsprechend einer effektiven Verstimmung $\Delta(\tau) < 0$) schließlich aufwärts (entsprechend $\Delta(\tau) > 0$) und nimmt dabei den Blochvektor, der ursprünglich wegen der Anfangsbedingung (3.2) ebenfalls abwärts gerichtet war, in geringem Winkelabstand mit. In Abb. 7a führt dieser Effekt knapp oberhalb der gestrichelten Linie zu hohen Bestetzungszahlen ρ_{22} des oberen Zustands; speziell erhält man für $\Delta_0 = -4.4 \text{ nsec}^{-1}$, $\tau = 15.5 \text{ nsec}$ den Wert $\rho_{22} = 0.8$, was einer recht weitgehenden Inversion entspricht. Es handelt sich dabei um einen typischen Zweiphotoneneffekt; bei einem Einphotonenübergang, wo es keine dynamische Starkverschiebung gibt, müßte man das Pumpfeld während des Anregungspulses durchstimmen, um ähnliches zu erreichen.

Wären die dem Konzept des adiabatischen schnellen Durchgangs zugrundeliegenden Voraussetzungen exakt erfüllt, müßte der Blochvektor dem Drehmomentvektor auch im weiteren Zeitverlauf folgen und insbesondere beim Abklingen des Pumpulses wieder abwärts wandern. Das Atom bliebe schließlich im Grundzustand zurück. Tatsächlich sind im hier behandelten Fall die ersten beiden der oben genannten Bedingungen nur teilweise erfüllt, so daß der Winkelabstand zwischen Drehmomentvektor und Blochvektor im Zeitverlauf immer mehr anwächst. So führt

die geringfügige Verletzung der ersten Bedingung vor allem zu einem unvollständigen Abbau der Besetzung ρ_{22} nach dem Verschwinden des Pumpfeldes, entsprechend die Verletzung der zweiten Bedingung zu den der Anstiegsphase des Pumpimpulses folgenden Rabioszillationen in Abb. 7.

Während der in Abb. 5–7 veranschaulichten Verschiebung der Niveaubesetzung vom Grundzustand $|1\rangle$ in Richtung des zweiphotonengepumpten Zustandes $|2\rangle$ bleiben die bisher nicht weiter diskutierten Besetzungszahlen der übrigen Niveaus $|i\rangle$, $i = 3, 4, 5, \dots$ wegen der geringen Übergangswahrscheinlichkeiten w_{ij} relativ klein und ihre Summe liegt durchweg unter 0.1. Die Bewegung von ρ_{11} verläuft daher angenähert umgekehrt wie die Bewegung von ρ_{22} .

3.4 Verstärkungscharakteristik am Anfang des aktiven Mediums

Hat man das Gleichungssystem (3.2) gelöst und so den zeitlichen Verlauf von Besetzungszahlen und Zweiphotonenkohärenz bestimmt, kann man nun das aus den beiden restlichen Materialgleichungen (2.13e,f) und den Ausbreitungsgleichungen (3.1) bestehende partielle Differentialgleichungssystem für Stokes- und Idlerfeld in Angriff nehmen, in das $\rho_{11}(\tau)$, $\rho_{22}(\tau)$, $\rho_{33}(\tau)$ und $\rho_{12}(\tau)$ als Parameter eingehen. Dabei ist es wünschenswert, möglichst ohne spezielle Voraussetzungen über die explizite Form der in Abschnitt 3.1 und 3.2 diskutierten Eingangsfelder $\mathcal{E}_s(z=0, \tau)$ und $\mathcal{E}_i(z=0, \tau)$ auszukommen. Weil nun das zu lösende partielle Differentialgleichungssystem in Stokes- und Idlerfeld linear ist, läßt sich seine allgemeine Lösung bestimmen, indem man zunächst nach speziellen Lösungen für monochromatische Eingangsfelder mit beliebiger, fest vorgegebener Verstimmung δ_0 und beliebigen fest vorgegebenen von τ unabhängigen komplexen Eingangsamplituden $\mathcal{E}_s(z=0)$, $\mathcal{E}_i(z=0)$ fragt. Allgemeine Eingangsfelder lassen sich stets als Superposition solcher spezieller Eingangsfelder schreiben; die entsprechende Superposition der zu diesen speziellen Eingangsfeldern gehörigen speziellen Lösungen liefert dann das gesuchte Resultat.

Erfolgt die Phasenrelaxation so schnell, daß ρ_{13} und ρ_{23} den übrigen Größen in (2.13e,f) adiabatisch folgen, ist die Situation besonders einfach. Bei den Natrium-Experimenten ist diese Bedingung recht gut erfüllt, ähnlich wie die Bedingung für

die Gültigkeit von Formel (3.8) im vorangegangenen Abschnitt. Setzt man die adiabatische Lösung der Materialgleichungen (3.8) in das System (3.1) ein, erhält man schließlich

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial z} \nu_{23}(z, \tau) &= c_{11}(\tau) \nu_{23}(z, \tau) + c_{12}(\tau) \nu_{31}^*(z, \tau) \\ \frac{\partial}{\partial z} \nu_{31}^*(z, \tau) &= c_{21}(\tau) \nu_{23}(z, \tau) + c_{22}(\tau) \nu_{31}^*(z, \tau).\end{aligned}\quad (3.9)$$

Die Koeffizienten haben dabei die Werte

$$c_{11} = \kappa \frac{(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)(\rho_{22} - \rho_{33}) - i\nu_{21}\rho_{12}}{(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)(\gamma_{23} - i\delta) + |\nu_{21}|^2} \quad (3.10a)$$

$$c_{12} = \kappa \frac{i\nu_{21}(\rho_{33} - \rho_{11}) + (\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)\rho_{12}^*}{(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)(\gamma_{23} - i\delta) + |\nu_{21}|^2} \quad (3.10b)$$

$$c_{21} = \kappa' \frac{i\nu_{21}^*(\rho_{22} - \rho_{33}) - (\gamma_{23} - i\delta)\rho_{12}}{(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)(\gamma_{23} - i\delta) + |\nu_{21}|^2} \quad (3.10c)$$

$$c_{22} = \kappa' \frac{(\gamma_{23} - i\delta)(\rho_{33} - \rho_{11}) + i\nu_{21}^*\rho_{12}^*}{(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)(\gamma_{23} - i\delta) + |\nu_{21}|^2}. \quad (3.10d)$$

Da die Koeffizienten dieses Gleichungssystems für die hier betrachteten kleinen Verstärkerlängen nicht von z abhängen, kann man die Lösung durch einen Exponentialansatz finden. Das sich daraus ergebende Eigenwertproblem führt auf zwei Werte für den räumlichen Anstiegskoeffizienten des Feldes:

$$\lambda_{1,2} = \frac{c_{11} + c_{22}}{2} \pm \frac{c_{11} - c_{22}}{2} \sqrt{1 + \frac{4c_{12}c_{21}}{(c_{11} - c_{22})^2}}. \quad (3.11)$$

Setzt man die passenden Anfangsbedingungen ein, nimmt die Lösung, als zweidimensionaler komplexer Spaltenvektor geschrieben, die folgende Gestalt an:

$$\begin{pmatrix} \nu_{23}(z, \tau) \\ \nu_{31}^*(z, \tau) \end{pmatrix} = \sum_{i=1,2} \frac{\nu_{23}(z=0)(c_{11} - \lambda_{3-i}) + \nu_{31}^*(z=0)c_{12}}{c_{12}(\lambda_i - \lambda_{3-i})} \begin{pmatrix} c_{12} \\ \lambda_i - c_{11} \end{pmatrix} e^{\lambda_i z}. \quad (3.12)$$

Bei den hier aufgeführten Resultaten wurde für die Stokes- und Idlerwelle eine Ausbreitung mit exakt gleicher Phasengeschwindigkeit vorausgesetzt. Im entgegengesetzten Grenzfall sehr schlechter Phasenanpassung verschwindet die Kopplung zwischen Stokes- und Idlerwelle; für das Stokesfeld ergibt sich dann die Formel

$$\nu_{23}(z, \tau) = \nu_{23}(z=0) e^{c_{11}z}. \quad (3.13)$$

Legt man hinsichtlich der Größenordnung der Anfangswerte $\nu_{23}(z=0)$ sowie gegebenenfalls $\nu_{31}^*(z=0)$ die in Abschnitt 3.2 angegebene Schätzung zugrunde und untersucht den Einfluß der am Ende von Abschnitt 3.2 vernachlässigten Sättigungsterme im Gleichungssystem (2.13), kommt man zu folgender Einschätzung. Offenbar kann das Anfangsfeld zunächst entsprechend den Formeln (3.12) oder (3.13) um mehrere Zehnerpotenzen anwachsen, bevor merkliche Sättigungserscheinungen auftreten, die diesen Anstieg bremsen. Bereits geringe Unterschiede der in den Exponenten stehenden Anstiegskoeffizienten führen dabei am Ende des linearen Verstärkungsbereichs zu stark unterschiedlichen Ergebnissen. Bei genügend großer Verstärkerlänge z steuert daher zu Formel (3.12) im allgemeinen nur einer der beiden Summanden i merklich bei. Und zwar derjenige, dessen Anstiegskoeffizient λ_i den größeren Realteil aufweist. Formel (3.12) liefert dann gegen Ende des linearen Verstärkungsbereichs für Stokes- und Idlerfeld jeweils einen Intensitätsanstieg proportional zu der Exponentialfunktion

$$I_s, I_l \sim e^{2 \max [\operatorname{Re}(\lambda_1), \operatorname{Re}(\lambda_2)] z}.$$

Für den Fall des Natriums ist der hier auftretende Intensitätsverstärkungskoeffizient in Abb. 8 dargestellt. Es ist interessant, ihn mit dem Intensitätsverstärkungskoeffizienten $2c_{11}$ zu vergleichen, den man bei fehlender Kopplung zwischen Stokes- und Idlerfeld entsprechend Formel (3.13) bekommt. Es zeigt sich, daß beiderlei Intensitätsverstärkungskoeffizienten bis auf wenige Prozent übereinstimmen. Das bedeutet, daß man das Anwachsen des Stokesfeldes im Bereich linearer Verstärkung allein durch den Hyper-Raman-Effekt beschreiben kann, ohne unbedingt den Einfluß des Idlerfeldes berücksichtigen zu müssen. Ein ähnliches Ergebnis erhält man auch für den Fall des Strontiums. Im Gegensatz zum oben behandelten Fall kann man dort die Materialgleichungen (2.13 e, f) ebensowenig adiabatisch behandeln wie in Abschnitt 3.2 die Gleichung für ρ_{12} . Dennoch konzentriert sich dort die Verstärkung ähnlich wie in Abb. 8 in der Umgebung einer Hyperbellinie, weist allerdings zusätzlich kurzperiodische Modulationen in Δ und δ auf. Der Abstand zwischen den Ästen der Hyperbel markiert dabei in jedem Fall die Stark-Aufspaltung, die Lage des Hyperbelursprungs gibt die vom Pumpfeld verursachte Starkverschiebung an.

Entsprechend den eben gemachten Bemerkungen soll nun die Wechselwirkung mit dem Idlerfeld vernachlässigt werden. Bei gegebenem Stokesfeld ist dann der aus der Ausbreitungsgleichungen (3.1a) und den Materialgleichungen (2.6 e, f) folgende

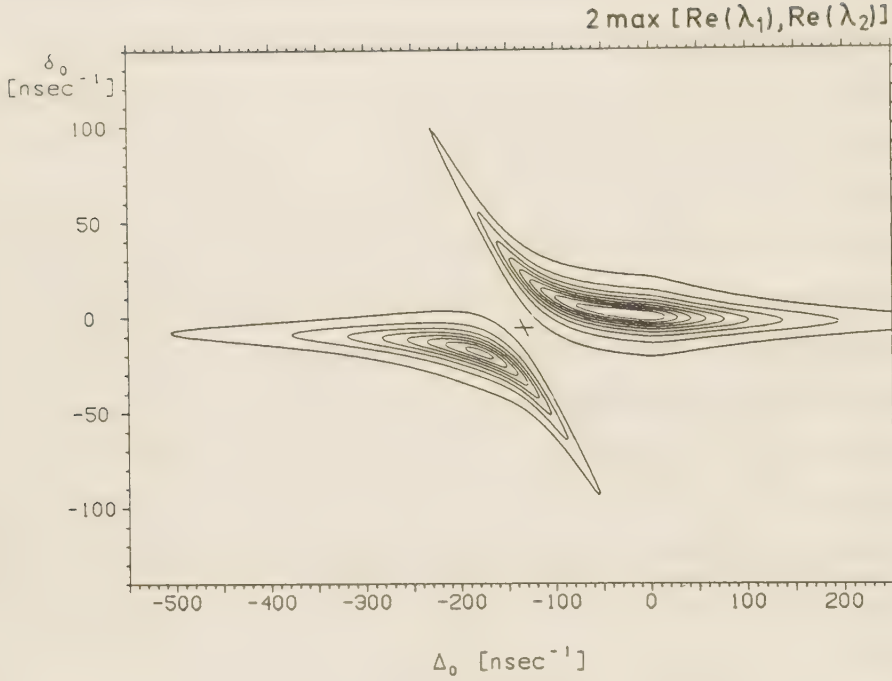


Abb. 8: Effektiver Intensitätsverstärkungskoeffizient $2 \max [\operatorname{Re}(\lambda_1), \operatorname{Re}(\lambda_2)]$ beim Natrium für den Zeitpunkt $\tau = 18 \text{ nsec}$. Das Maximum der Pumpintensität beträgt $2 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ wie in Abb. 5 und 6. Die Höhenlinien entsprechen 10%, 20%, 30%, ..., 90% des Maximalwertes $8.39 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$. Das Kreuz in der Mitte markiert die Starkverschiebung zum Zeitpunkt $\tau = 18 \text{ nsec}$.

Anstieg des Stokesfeldes $\frac{\partial}{\partial z} \nu_{23}(z, \tau)$ zu einer bestimmten Zeit τ offenbar linear bezüglich der Inversion des Stokesüberganges $\rho_{22}(\tau') - \rho_{33}(\tau')$ und der Zweiphotonenkohärenz $\rho_{12}(\tau')$ für $\tau' \leq \tau$. Es stellt sich nun die Frage nach dem relativen Gewicht der beiden Treibterme $\rho_{22}(\tau') - \rho_{33}(\tau')$ und $\rho_{12}(\tau')$ für das Anwachsen des Stokesfeldes. Die numerische Rechnung zeigt, daß der von der Zweiphotonenkohärenz $\rho_{12}(\tau')$ herrührende „Raman“-Beitrag nur im Bereich der ansteigenden Flanke des Pumppulses bis zu maximal 10% zu $\frac{\partial}{\partial z} \nu_{23}(z, \tau)$ beisteuert, sonst aber gegenüber dem von der Stokesinversion $\rho_{22}(\tau') - \rho_{33}(\tau')$ herrührenden „Laser“-Beitrag vernachlässigt werden kann. Kann man, wie bei den Natriumexperimenten möglich, noch die adiabatische Näherung heranziehen, ist die Wirkung der beiden genannten Treibterme noch deutlicher zu verfolgen. Als „Laser-“ bzw. „Raman“-Beitrag zum Verstärkungskoeffizienten (3.10a) identifiziert man hier

$$\frac{\kappa(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)(\rho_{22} - \rho_{33})}{(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)(\gamma_{23} - i\delta) + |\nu_{21}|^2} \quad \text{bzw.} \quad \frac{-i\kappa\nu_{21}\rho_{12}}{(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)(\gamma_{23} - i\delta) + |\nu_{21}|^2}.$$

Die Kleinheit des „Raman“-terms hängt dabei wegen der Beziehung (3.8) eng mit der Tatsache zusammen, daß die Besetzungszahldifferenz $\rho_{11} - \rho_{22}$, die ohne Anregung nahezu den Wert eins hat, durch die Wirkung des intensiven resonanten Pumpimpulses bis auf Werte unter 0.01 abgebaut wird.

3.5 Sättigungserscheinungen bei größeren Verstärkerlängen z

Angesichts der in den Experimenten benutzten Pumpfeldstärken und Dampfdichten kommt es im allgemeinen bereits innerhalb von Distanzen z im Bereich von Millimeterbruchteilen zur Verstärkung der am Anfang des aktiven Mediums angesetzten Stokesintensität um einen Faktor $\simeq 10^8$. Ausgehend von den in Abschnitt 3.2 angegebenen Eingangsfeldern kommt man so sehr schnell zu Stokes-Rabifrequenzen, die nicht mehr als klein gegen die übrigen maßgeblichen Zeitkonstanten angesehen werden können. Neben die in den Gleichungen (3.7) bereits enthaltene Sättigung der Atome durch das Pumpfeld treten damit zusätzliche Sättigungserscheinungen aufgrund des anwachsenden Stokesfeldes. Über den weitaus größten Teil der im Experiment benutzten Länge des aktiven Mediums folgt die Stokesverstärkung also nicht mehr dem in den vorangehenden Abschnitten benutzten linearen Gleichungssystem (3.1), (2.13e,f), sondern wird wesentlich durch die vom Stokesfeld selbst verursachte Sättigung bestimmt. Als wichtigster Effekt erweist sich dabei die atomare Sättigung, die bereits in den ursprünglichen Materialgleichungen (2.13) enthalten war und beim Übergang nach (3.7) vernachlässigt wurde. Demgegenüber treten die mit einer Schwächung des Pumpfeldes, beispielsweise aufgrund der Umsetzung eines Teils der Pumpenergie in Stokeslicht, zusammenhängenden Nichtlinearitäten zurück. Anders ist dies im Fall nichtresonanter Ramanstreuung bei vernachlässigbar geringer atomarer Umbesetzung. Dort stellt die erst bei relativ starken Stokesfeldern merkliche Pumpfeldabschwächung tatsächlich den ersten nichtlinearen Effekt dar, der zu einer Abflachung des bis dahin exponentiellen Stokesanstiegs führt.¹⁷

Um den atomaren Sättigungserscheinungen Rechnung zu tragen, braucht man im Prinzip lediglich die ursprünglichen Materialgleichungen (2.13) zusammen mit den Ausbreitungsgleichungen (3.1) zu lösen. Um den Aufwand eines numerischen Lösungsansatzes in Grenzen zu halten und ein anschauliches Verständnis der Resultate zu erleichtern, könnte man daran denken, wie im vorangehenden Abschnitt

3.4 von einem monochromatischen fiktiven Eingangsfeld zur Simulation der spontanen Stokesfeldentstehung auszugehen. Dies ist tatsächlich von Guzman⁵⁷ für ein System ähnlich den hier behandelten versucht worden. Man kann hier jedoch einwenden, daß die zu Beginn des vorangehenden Abschnitts für einen solchen Ansatz gegebene Rechtfertigung tatsächlich nur im linearen Verstärkungsbereich unmittelbar am Anfang des aktiven Mediums gilt. Nur dort bleiben die verschiedenen, in einem realistischen rauschäquivalenten Eingangsspektrum (3.5) enthaltenen Frequenzen mit Sicherheit ohne jede Wechselwirkung miteinander. So daß man quasi das Schicksal jeder einzelnen Frequenzkomponente für sich studieren kann. Das Dilemma liegt darin, daß bereits eine einzige, mit ihrer Intensität in den Bereich der Sättigung kommende Stokes-Frequenzkomponente auch die Verstärkung aller übrigen Frequenzkomponenten ändert. Besonders einfach zu überschauen ist der Spezialfall, wo, von der einen sättigenden Komponente abgesehen, all die übrigen Komponenten noch so schwach sind, daß ihre Verstärkung als linear angesehen werden kann. Dieser Fall wird im nächsten Kapitel untersucht. In Abschnitt 11.2 wird später der eben erwähnte naive, auch im Bereich der Sättigung von einem monochromatisches Eingangssignal ausgehende Ansatz für stationäre Fälle mit den exakten voll quantenmechanischen Rechnungen verglichen.

4. Die Wirkung einer einzelnen sättigenden Stokesfeld-Frequenzkomponente auf Raman- bzw. Hyper-Raman-Verstärkung

4.1 Problemstellung und Lösungsansätze bei Zweiniveausystemen

Aus einer Reihe von Untersuchungen^{64–66} ist bekannt, wie ein in ein Ensemble von Zweiniveausystemen eingestrahltes intensives monochromatisches Sättigungsfeld die Transmission eines gleichzeitig eingestrahlten schwächeren, nichtsättigenden monochromatischen Probefeldes verändert. Alle Feldfrequenzen sollen hier relativ zur atomaren Resonanz gemessen werden; die Frequenz des Sättigungsfeldes wird durch die effektive Verstimmung δ , die des Probefeldes durch die entsprechende Verstimmung δ' ausgedrückt. Ein Teil der erwähnten Änderung spiegelt den Einfluß des Sättigungsfeldes auf die Niveaubesetzungen wieder. Bei homogener Linienverbreiterung ändert sich dabei die Absorption aller möglichen Probefrequenzen δ' um den

gleichen Faktor. Der andere, auch als kohärent bezeichnete Anteil beruht auf Oszillationen der den beiden beteiligten atomaren Niveaus zugeordneten Besetzungszahlen. Diese Oszillationen werden durch das nichtlineare Zusammenwirken der beiden Felder hervorgerufen. Die mit der Frequenz $\delta' - \delta$ erfolgenden Besetzungszahloszillationen wiederum streuen einen Teil des intensiven Sättigungsfeldes in dessen beide symmetrisch liegende Seitenbänder bei den Frequenzen $\delta \pm (\delta' - \delta)$. Eines dieser beiden Seitenbänder entspricht dem Probefeld selbst, das auf diese Weise verstärkt oder geschwächt wird.

Bei genügender optischer Dicke des aktiven Mediums kann die in das andere Seitenband gestreute Stokefeldkomponente schließlich das Feld in diesem anderen Seitenband auf Werte anwachsen lassen, die mit denen des ursprünglichen Probefeldes vergleichbar sind. Dieses andere Seitenband mit der Frequenz $\delta - (\delta' - \delta)$ wirkt dann als ein zweites Probefeld, das seinerseits Besetzungszahloszillationen erzeugt und in der Folge wiederum beide Stokes-Seitenbänder beeinflusst. Wegen der engen Kopplung zwischen beiden Seitenbändern ist es daher in diesem Fall sinnvoll, zur Beschreibung der Ausbreitung von zwei symmetrisch zum Sättigungsfeld liegenden Probefeldern auszugehen.⁶⁵

4.2 Verallgemeinerung auf effektive Dreiniveausysteme

Die für Zweiniveaumatome übliche Argumentationsweise soll nun auf die in Kapitel 2 und 3 beschriebenen Systeme verallgemeinert werden. Wir beschränken uns dabei auf den gewöhnlichen Ramaneffekt oder den Hyper-Raman-Effekt ohne Idlerfeld. Man kann dann von den Materialgleichungen (2.6) und der Feldausbreitungsgleichung (3.1a) ausgehen. Man setzt nun für den dort vorkommenden Stokesverstimmungs-Bezugspunkt δ die im vorigen Abschnitt ebenfalls mit δ bezeichnete effektive Verstimmung des Sättigungsfeldes ein und kann dann die halbe Rabifrequenz des gesamten Stokesfeldes in der Form

$$\nu_{23}(\tau) = \nu_{23}^{[0]} + \nu_{23}^{[\delta' - \delta]} e^{-i(\delta' - \delta)\tau} + \nu_{23}^{[\delta - \delta']} e^{-i(\delta - \delta')\tau} \quad (4.1)$$

ansetzen. Wie hier werden in diesem Kapitel ganz allgemein die komplexen Amplituden einzelner Frequenzkomponenten der Größen $\nu_{23}(\tau)$ oder $\rho_{ij}(\tau)$ mit hochgestellten eckigen Klammern gekennzeichnet; in diesen eckigen Klammern wird die Frequenzdifferenz zu der jeweils eindeutig bestimmten Frequenzkomponente von

$\nu_{23}(\tau)$ bzw. $\rho_{ij}(\tau)$ angegeben, die man bei fehlendem Probefeldern allein aufgrund des Sättigungsfeldes erhält. Die Änderungsgeschwindigkeit von Pump-Rabifrequenz und gegebenenfalls Pump-Starkverschiebung soll im folgenden als klein gegen $\delta' - \delta$ angenommen werden. Man setzt nun den Ausdruck (4.1) in die Materialgleichungen (2.6) ein und vergleicht für jede Frequenz die auf beiden Seiten vorkommenden Terme. Beschränkt man sich dabei auf Beiträge zu den Dichtematrixkomponenten von höchstens erster Ordnung in einem der beiden Probefelder $\nu_{23}^{[\delta' - \delta]}$ oder $\nu_{23}^{[\delta - \delta']}$ und auf die drei wichtigsten atomaren Niveaus $i = 1, 2, 3$, erhält man ein in sich geschlossenes Differentialgleichungssystem für die 9×3 Frequenzkomponenten $\rho_{ij}^{[\nu]}$, $i = 1, 2, 3$, $j = 1, 2, 3$, $\nu = 0, \pm(\delta' - \delta)$. Teilweise sind sie durch Konjugation miteinander verknüpft:

$$\rho_{ij}^{[\nu]} = \rho_{ji}^{[-\nu]}. \quad (4.2)$$

Die Komponenten mit $\nu = 0$ entsprechen dabei der Wirkung des Sättigungsfeldes. Sie bilden ein in sich geschlossenes Untersystem von Differentialgleichungen, das man zunächst für sich allein lösen kann. Setzt man die gefundene Lösung überall als nunmehr bekannte Größe ein, erhält man für die 9 Komponenten mit $\nu = \delta' - \delta$ ebenfalls ein in sich geschlossenes lineares Differentialgleichungssystem. Seine Lösung besteht aus einem von $\nu_{23}^{[\delta' - \delta]}$ und einem von $\left(\nu_{23}^{[\delta - \delta']}\right)^*$ linear abhängigen Anteil; die Koeffizienten dieser Linearkombination sind eine nichtlineare Funktion von Pump- und Sättigungsfeld.

Hat man diese Lösung bestimmt, kennt man angesichts der Beziehung (4.2) beide Seitenbänder der Dichtematrix. Bei stationärem Pumpfeld erhält man gewöhnliche algebraische Gleichungen anstelle der Differentialgleichungen und kann die hier geschilderte Rechnung weitgehend analytisch durchführen.

Wertet man für diesen Fall Gleichung (3.1a) für beide Stokes-Seitenbänder aus und nutzt die am Schluß des vorletzten Absatzes angeführte lineare beziehungsweise antilineare Abhängigkeit der Dichtematrix-Seitenbänder von diesen Stokes-Seitenbändern aus, erhält man ein lineares System gekoppelter Ausbreitungsgleichungen

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial z} \nu_{23}^{[\delta' - \delta]} &= c_{11} \nu_{23}^{[\delta' - \delta]} + c_{12} \left(\nu_{23}^{[\delta - \delta']} \right)^* \\ \frac{\partial}{\partial z} \left(\nu_{23}^{[\delta - \delta']} \right)^* &= c_{21} \nu_{23}^{[\delta' - \delta]} + c_{22} \left(\nu_{23}^{[\delta - \delta']} \right)^*. \end{aligned} \quad (4.3)$$

Dabei treten andere Koeffizienten c_{ij} auf als bei dem formal ähnlichen Gleichungssystem (3.9). Die intensive Zentralkomponente des Stokesfeldes ändert sich mit z entsprechend der Gleichung $\frac{\partial}{\partial z} \nu_{23}^{[0]} = -i\kappa \rho_{23}^{[0]}$. Die dadurch bedingte Änderung der Koeffizienten c_{ij} kann jedoch im allgemeinen gegenüber dem raschen Anstieg der Stokes-Seitenbänder vernachlässigt werden. Sieht man einmal von der anderen Bedeutung der Feldkomponenten und der Koeffizienten c_{ij} im Gleichungssystem (3.9) ab, kann man doch die an (3.9) anschließende Diskussion praktisch vollständig übernehmen. Insbesondere kann man für die Intensität der Seitenbänder mit einem Anstieg proportional zu der Exponentialfunktion

$$\left| \nu_{23}^{[\delta' - \delta]} \right|, \left| \nu_{23}^{[\delta - \delta']} \right| \sim e^{2 \max [\operatorname{Re}(\lambda_1), \operatorname{Re}(\lambda_2)] z}$$

rechnen, wobei λ_1 und λ_2 entsprechend dem Ausdruck (3.11) gebildet werden. Dieser exponentielle Anstieg findet sein Ende durch die von den wachsenden Seitenbändern schließlich ausgelösten Sättigungserscheinungen.

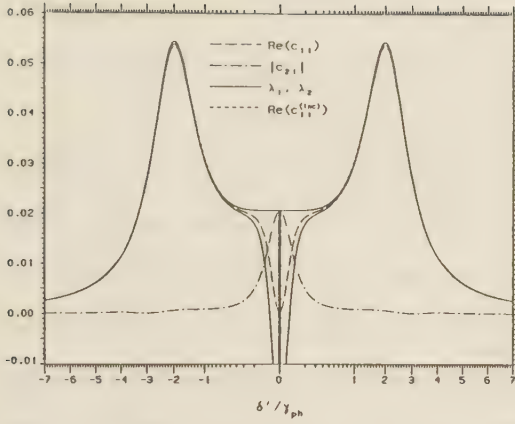
4.3 Ergebnisse

Als Ergebnis der beschriebenen Rechnung ist nun in Abb. 9–11 der relative Anstieg der interessierenden Stokes-Frequenzkomponenten für einige stationär gepumpte Fälle wiedergegeben. Die eng gestrichelte Linie stellt dabei den oben c_{11} genannten Anstiegskoeffizienten des Seitenbandes δ' aufgrund seiner Selbstwechselwirkung dar. Die strichpunktierte Linie gibt den durch $|c_{12}|$ charakterisierten Beitrag dieses Seitenbandes zum anderen Seitenband bei $\delta - (\delta' - \delta)$ wieder. Die durchgezogenen Linien zeigen die beiden Eigenwerte λ_1 und λ_2 der gekoppelten Ausbreitungsgleichungen für die beiden Seitenbänder. Der schwarze Balken markiert mit seiner Abszisse die Frequenz und mit seiner Höhe den relativen Anstieg $(\nu_{23}^{[0]})^{-1} \frac{\partial}{\partial z} \nu_{23}^{[0]}$ des dem jeweiligen Plot zugrundeliegenden Sättigungsfeldes. Die mit weiten Abständen gestrichelte Linie zeigt schließlich den um den Einfluß kohärenter Effekte bereinigten inkohärenten Anteil $c_{11}^{(\text{inc})}$ an der relativen Verstärkung eines einzelnen Probefeldes δ' . Definitionsgemäß bekommt man diesen Anteil durch Nullsetzen der Besetzungszahl-Seitenbänder, woraufhin auch die Seitenbänder der Zweiphotonenkohärenz ρ_{12} verschwinden. Das Ergebnis entspricht Formel (3.10a), wobei für δ jetzt die Probefeld-Verstimmung δ' und für ρ_{22} , ρ_{33} und

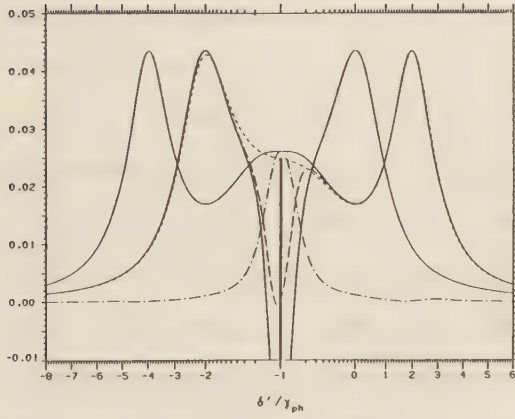
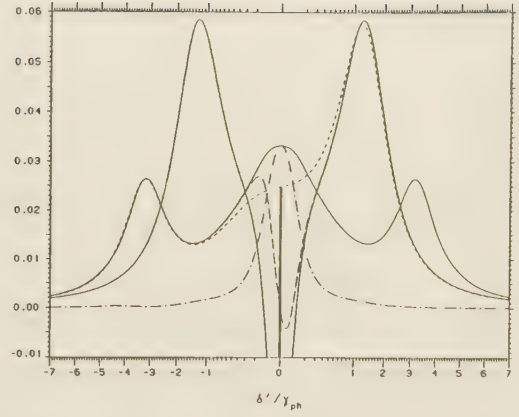
ρ_{12} die aus der kombinierten Wirkung von Pumpfeld und Stokes-Sättigungsfeld resultierenden Werte einzusetzen sind.

Von der bei Zweiniveausystemen bekannten Situation unterscheidet sich die hier untersuchte Anordnung vor allem durch den Einfluß des durch ν_{21} charakterisierten Pumpfeldes. Dieses Pumpfeld verändert zunächst einmal die Besetzungszahlen der am Stokesübergang unmittelbar beteiligten Niveaus $|2\rangle$ und $|3\rangle$. Kommt es dabei zu einer positiven Inversion $\rho_{22}^{[0]} - \rho_{33}^{[0]}$, erhält man für das mit diesem Übergang resonante Feld eine „Laser“verstärkung anstelle der bei Zweiniveausystemen meist auftretenden Absorption. Zusätzlich liefert die vom Pumpfeld hervorgerufene Kohärenz ρ_{12} einen „Raman“beitrag zum Anwachsen des Stokesfeldes, der bei Zweiniveausystemen keine Parallele hat. Die entscheidendste Änderung betrifft die Form der Verstärkungslinie, die durch den pumpinduzierten Starkeffekt aufgespalten und gegebenenfalls verschoben wird.

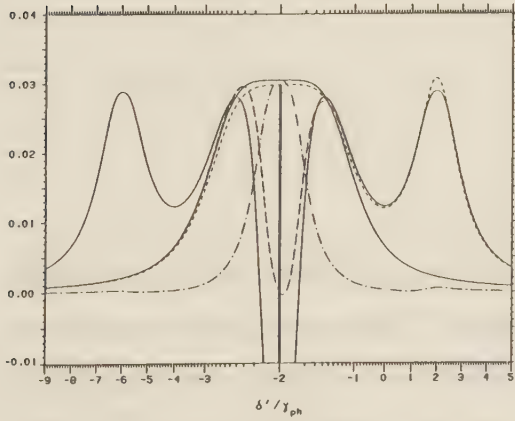
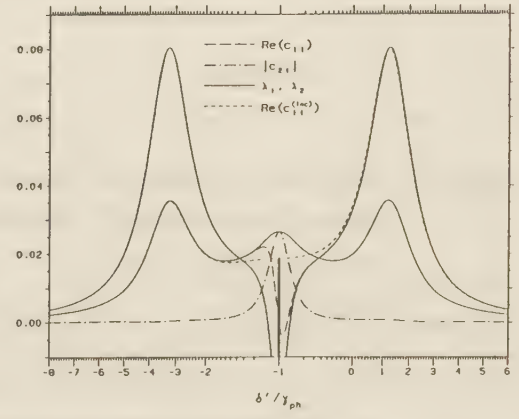
Die hier beschriebenen Effekte betreffen alle in Abb. 9–11 dargestellten Koeffizienten. Dabei ist das Verhalten des Koeffizienten $c_{11}^{(inc)}$ wegen seiner einfachen Berechenbarkeit (siehe vorletzter Absatz) besonders leicht zu überschauen und soll darum nicht weiter diskutiert werden. Sind die Besetzungszahl-Zerfallskonstanten w_{12} , w_{23} , w_{31} und die halbe Rabinofrequenz $\nu_{23}^{[0]}$ des Stokes-Sättigungsfeldes allesamt klein gegen die Phasenrelaxationskoeffizienten γ_{12} , γ_{13} , γ_{23} , beschränkt sich die durch kohärente Prozesse bedingte Abweichung der Größe c_{11} gegenüber $c_{11}^{(inc)}$ auf einen schmalen Bereich von Probefrequenzen δ mit $|\delta - \delta'| \ll \gamma_{12}, \gamma_{13}, \gamma_{23}$. Um eine höhere Auflösung zu erhalten, ist dieser Bereich in den Abbildungen gespreizt dargestellt. Ähnlich wie bei Zweiniveausystemen entspricht diese Abweichung für $\text{Re}(c_{11})$ einer Eindellung des Verstärkungs- bzw. Absorptionsprofils oder zeigt einen dispersionsähnlichen Verlauf. In einem anderen Typ von Experiment als dem in dieser Arbeit vornehmlich behandelten, nämlich dem der „probe-spectroscopy“ an optisch dünnen Schichten, wird genau diese Größe $\text{Re}(c_{11})$ gemessen. Der für die Verstärkung optisch dicker Schichten maßgebliche Koeffizient $\max[\lambda_1, \lambda_2]$ zeigt in der Nähe von $\delta' = \delta$ keine Eindellung, in Bild 9 b, c und 10 a, b sogar ein durch den Einfluß von c_{12} bedingtes Maximum. Insgesamt erkennt man, daß dieser für die Verstärkung optisch dicker Schichten maßgebliche Koeffizient bei festliegender Frequenz δ des Sättigungsfeldes bis zu fünf Maxima bei verschiedenen Probefrequenzen δ' haben kann. Im Falle eines Zweiniveausystems sind es nur maximal drei.⁶⁵



(a)



(b)



(c)

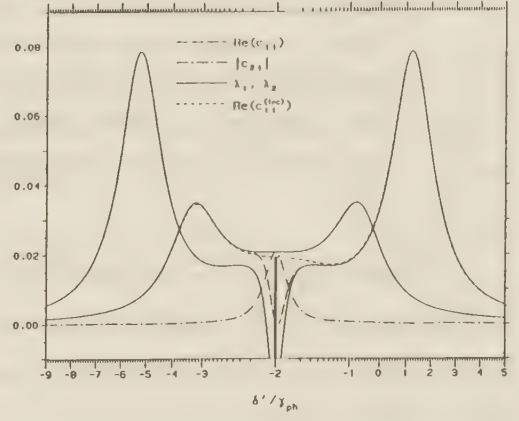
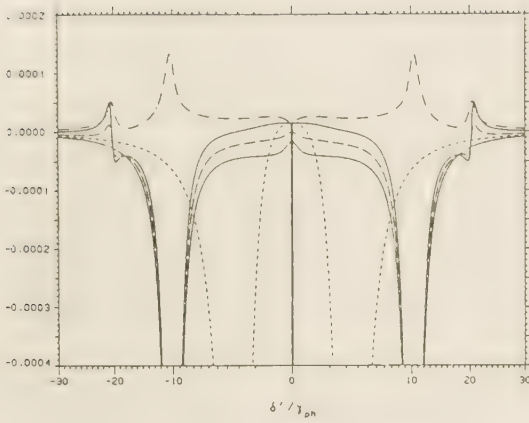
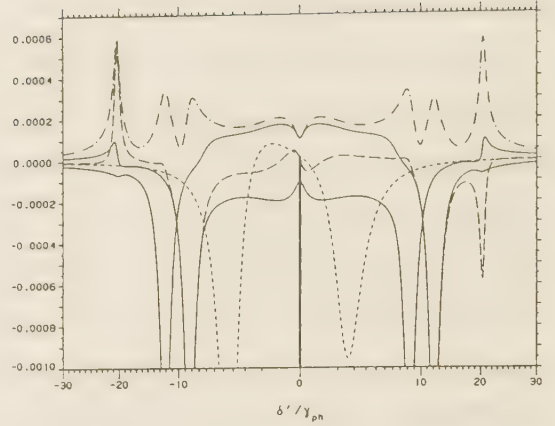


Abb. 9: [linkeBildreihe] Verstärkungskoeffizienten der Stokes-Seitenbänder für $w_{23}/\gamma_{ph} = 0.01$, $w_{31}/\gamma_{ph} = 0.02$, $|\nu_{23}^{[0]}|/\gamma_{ph} = 0.2$ und $\Delta = 0$. (a) $\delta/\gamma_{ph} = 0$; der Koeffizient $c_{11}^{(inc)}$ fällt hier praktisch mit dem größeren der beiden Eigenwerte λ_1, λ_2 zusammen. (b) $\delta/\gamma_{ph} = -1$, (c) $\delta/\gamma_{ph} = -2$. Bezeichnungen der Kurven im oberen Teilbild (a). Das obere Ende des schwarzen Balkens in der Bildmitte markiert jeweils den Verstärkungskoeffizienten des Stokes-Sättigungsfeldes.

Abb. 10: [rechteBildreihe] Wie Abb. 9, aber für $\Delta/\gamma_{ph} = 2$.

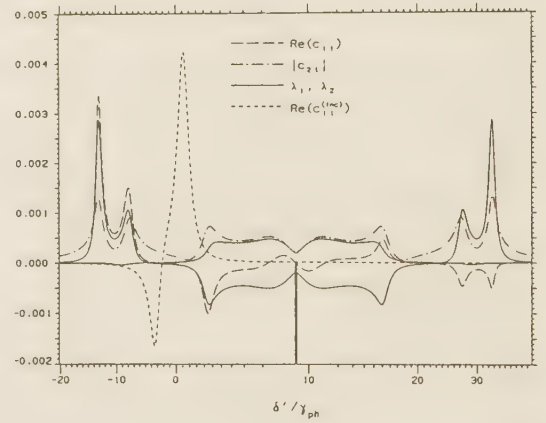


(a)



(b)

Abb. 11: Die Verstärkungskoeffizienten der Stokes-Seitenbänder für die Werte $w_{23}/\gamma_{ph} = 0.01$, $w_{31}/\gamma_{ph} = 0.02$ und $|\nu_{23}^{[0]}|/\gamma_{ph} = 10$. (a) $\Delta = 0$, $\delta = 0$; (b) $\Delta/\gamma_{ph} = 2$, $\delta = 0$; (c) $\Delta/\gamma_{ph} = 2$, $\delta/\gamma_{ph} = -9.79$. Bezeichnungen der Kurven wie im letzten Teilbild (c) aufgeführt. Das obere Ende des schwarzen Balkens in der Bildmitte markiert jeweils den Verstärkungskoeffizienten des Stokes-Sättigungsfeldes.



(c)

Steigert man das Stokes-Sättigungsfeld, werden die Kurven sehr viel komplizierter und ihre Abhängigkeit von den verschiedenen Parametern ist kaum mehr zu überschauen. Relativ einfach werden die Verhältnisse erst wieder bei sehr großen Stokes-Sättigungsfeldern $|\nu_{23}^{[0]}| \gg |\nu_{21}|, \gamma_{12}, \gamma_{13}, \gamma_{23}$, siehe Abb. 11. Die kohärente Wechselwirkung mit diesem starken Feld bestimmt dann auch bei größeren Frequenzabständen $\delta' - \delta$ weitgehend die Verstärkungscharakteristik der Stokes-Seitenbänder. Besonders deutlich macht sich dabei der von $\nu_{23}^{[0]}$ hervorgerufene Anteil der Starkaufspaltung bemerkbar. Die für optisch dicke Schichten maßgebliche Verstärungskonstante $\max[\lambda_1, \lambda_2]$ ist jetzt positiv nur noch in einem breiten Band um die Frequenz $\delta' = \delta$ (mit einer Eindellung in $\delta' = \delta$ selbst) sowie für zwei schmale Linien in der Nähe der Frequenzen $\delta' = \delta \pm 2|\nu_{23}^{[0]}|$. In Abb. 11c

erkennt man für jede dieser beiden schmalen Linien noch eine durch das Pumpfeld $|\nu_{21}|$ bestimmte Starkaufspaltung.

Welche Folgerungen ergeben sich aus diesen Resultaten für die Beschreibung von Hyper-Raman-Experimenten der in Kapitel 3 beschriebenen Art? Diese Resultate zeigen, auf wie subtile und nicht leicht überschaubare Art bereits eine einzige sättigende Stokesfeld-Frequenzkomponente die Verstärkung aller übrigen Frequenzkomponenten modifiziert. Es erscheint unmöglich, diese Effekte durch alle Stufen des Verstärkungsprozesses hindurch mit Hilfe einfacher heuristischer Vorstellungen zu verfolgen, von der Wirkung kleiner Stokesfelder am Beginn des aktiven Mediums angefangen bis weit in den bei Experimenten erreichten Bereich hoher Sättigung hinein. Es zeigt sich, beispielsweise in Abb. 11c, daß es im allgemeinen immer Frequenzkomponenten gibt, die schneller anwachsen als die der jeweiligen Rechnung zugrundegelegte Stokes-Sättigungskomponente. Während sich im linearen Bereich die spektrale Leistungsdichte (3.4) mit wachsendem z auf einen immer kleineren Bereich von Frequenzen einzuengen beginnt, ist so für den Bereich der Sättigung eher eine Verbreiterung zu erwarten. Führt man die Diskussion aus Abschnitt 3.5 fort, scheint es aus all diesen Gründen nötig, die beim spontanen Aufbau des Stokesfeldes entstehenden Frequenzkomponenten alle gleichzeitig zu berücksichtigen, will man die Sättigungsphänomene korrekt beschreiben.

Als Ausgangspunkt für ein solches Vorgehen soll in den nächsten beiden Kapiteln zunächst der spontane Aufbau sowie die ungesättigte Verstärkung des Stokesfeldes beschrieben werden. Um den Ergebnissen eine sichere Basis zu geben und nach möglichen unvorhergesehenen Effekten zu fahnden, soll dazu anstelle der in Abschnitt 3.2 angeführten Ratengleichungstheorie eine voll quantenmechanische Rechnung verwendet werden. Die gleichzeitige Wirkung der so erhaltenen Stokes-Frequenzkomponenten, die im Sättigungsbereich eine entscheidende Rolle spielt, wird dann in Kapitel 10 und 11 behandelt.

5. Wechselwirkung quantisierter Strahlungsfelder mit Mehrniveausystemen

5.1 Einfluß der Strahlungsfelder auf ein einzelnes isoliertes Mehrniveausystem

Die Quantisierung des Strahlungsfeldes und seiner Wechselwirkung mit Materie ist bereits von verschiedenen Autoren ausführlich behandelt worden.^{1,58,67} Wir beschränken uns darauf, einige der wichtigsten Ergebnisse hier aufzuführen. Legt man für das Vektorpotential des elektromagnetischen Feldes die Coulombbeziehung $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$ zugrunde, läßt sich der Operator für den transversalen Anteil des elektrischen Feldes im Heisenbergbild in der Form schreiben

$$\hat{\vec{E}}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}\lambda} i \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\vec{k}}}{2\epsilon_0 V}} \vec{u}_{\lambda} \left(\hat{b}_{\vec{k}\lambda} e^{-i\omega_{\vec{k}}t + i\vec{k}\cdot\vec{r}} + \hat{b}_{\vec{k}\lambda}^{\dagger} e^{i\omega_{\vec{k}}t - i\vec{k}\cdot\vec{r}} \right). \quad (5.1)$$

Dabei wird jede Strahlungsfeldmode durch den Wellenzahlvektor $\vec{k}$ sowie den Polarisationsindex λ , der die beiden Werte 1 und 2 annehmen kann, charakterisiert. $\vec{u}_{\lambda}$ ist der Einheitsvektor in Polarisationsrichtung, $\omega_{\vec{k}} = c|\vec{k}|$ die Eigenfrequenz der Mode. V ist das Periodizitätsvolumen der mit dem Ortsvektor $\vec{r}$ variierenden Modenfunktionen $\sim e^{\pm i\vec{k}\cdot\vec{r}}$. Zwischen einem Vernichtungsoperator $\hat{b}_{\vec{k}_1\lambda_1}$ und einem Erzeugungsoperator $\hat{b}_{\vec{k}_2\lambda_2}^{\dagger}$ für die Anregung des Strahlungsfeldes besteht die Vertauschungsrelation

$$\left[\hat{b}_{\vec{k}_1\lambda_1}, \hat{b}_{\vec{k}_2\lambda_2}^{\dagger} \right] = \delta_{\vec{k}_1\vec{k}_2} \delta_{\lambda_1\lambda_2}. \quad (5.2)$$

Die Vernichtungsoperatoren untereinander kommutieren, ebenso die Erzeugungsoperatoren untereinander.

Oft ist es möglich, sich bei der Behandlung eines konkreten Problems auf p Gruppen von Moden zu beschränken, wobei die Frequenzen einer Gruppe jeweils nahe beieinanderliegen. An einem festen Punkt $\vec{r}$, wo sich das im folgenden Absatz betrachtete Mehrniveausystem befindet, kann man dann die Darstellung benutzen

$$\hat{\vec{E}}(t) = \sum_{l=1}^p \left(\hat{\vec{\mathcal{E}}}_l^{(+)}(t) e^{-i\nu_l t} + \hat{\vec{\mathcal{E}}}_l^{(-)}(t) e^{i\nu_l t} \right). \quad (5.3)$$

Die Operatoren $\hat{\vec{\mathcal{E}}}_l^{(+)}(t)$ und $\hat{\vec{\mathcal{E}}}_l^{(-)}(t)$, die dabei als positiver bzw. negativer Frequenzanteil auftreten, sollen dabei gegenüber den optischen Frequenzen ν_l als zeitlich langsam variierend vorausgesetzt werden.

Ein Mehrniveausystem — wie in den vorangegangenen Kapiteln sprechen wir oft von Atomen, obwohl alles ebenso beispielsweise für Moleküle gilt — im eben genannten Punkt $\vec{r}$ kann durch Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren $\hat{a}_i^\dagger$ und $\hat{a}_i$ für alle seine möglichen Zustände i beschrieben werden. Diese Operatoren genügen den Vertauschungsrelationen

$$\hat{a}_i \hat{a}_j^\dagger + \hat{a}_j \hat{a}_i^\dagger = \delta_{ij} \quad \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j^\dagger + \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i^\dagger = 0 \quad \hat{a}_i \hat{a}_j + \hat{a}_j \hat{a}_i = 0. \quad (5.4)$$

Bezeichnet man mit ω_i die in Frequenzen umgerechneten Energien der einzelnen atomaren Zustände i , läßt sich der Hamiltonoperator des Mehrniveausystems in der Form schreiben

$$\hat{H}_{el} = \sum_i \hbar \omega_i \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i. \quad (5.5)$$

Für die Wechselwirkung zwischen Mehrniveausystem und Strahlungsfeld erhält man in Dipolnäherung den Operator

$$\hat{H}_w = -\hat{\vec{E}} \cdot \hat{\vec{p}} = -\hat{\vec{E}} \cdot \sum_{ij} \vec{\mu}_{ij} \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j. \quad (5.6)$$

Hier bezeichnet $\hat{\vec{p}}$ den Dipoloperator des Mehrniveausystems, $\vec{\mu}_{ij}$ die zugehörigen Matricelemente. Da die Operatoren $\hat{a}_j^\dagger$ und $\hat{a}_i$ in physikalisch wichtigen Größen als bilineare Kombinationen $\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i$ vorkommen, erweist es sich als zweckmäßig, die Heisenberg-Bewegungsgleichungen für diese Kombinationen aufzustellen:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}(\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i) &= \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{el} + \hat{H}_w, \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i] \\ &= \frac{i}{\hbar} \left[\sum_{nm} \left(\hbar \omega_n \delta_{nm} - \hat{\vec{E}}(t) \cdot \vec{\mu}_{nm} \right) \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_m, \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i \right] \end{aligned}$$

Da man $\hat{\vec{E}}(t)$ mit den atomaren Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren zur gleichen Zeit t vertauschen kann, gibt das

$$\frac{d}{dt}(\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i) = \frac{i}{\hbar} \sum_{nm} (\hbar \omega_n \delta_{nm} - \hat{\vec{E}}(t) \cdot \vec{\mu}_{nm}) [\hat{a}_n^\dagger \hat{a}_m, \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i].$$

Für den auftretenden Kommutator erhält man mit der ersten Formel in (5.4)

$$[\hat{a}_n^\dagger \hat{a}_m, \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i] = \hat{a}_n^\dagger (\delta_{nj} - \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_m) \hat{a}_i - \hat{a}_j^\dagger (\delta_{in} - \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_i) \hat{a}_m. \quad (5.7)$$

Da die zweimalige Anwendung von Vernichtungsoperatoren auf einen Einelektronen-zustand Null ergibt, bleiben im Ergebnis nur die Ausdrücke stehen

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}(\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i) &= \frac{i}{\hbar} \sum_{nm} (\hbar \omega_n \delta_{nm} - \hat{\vec{E}}(t) \cdot \vec{\mu}_{nm}) (\delta_{mj} \hat{a}_n^\dagger \hat{a}_i - \delta_{in} \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_n) \\ &= (\omega_j - \omega_i) \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i - \frac{i}{\hbar} \hat{\vec{E}}(t) \cdot \sum_{\mathbf{k}} (\vec{\mu}_{kj} \hat{a}_k^\dagger \hat{a}_i - \vec{\mu}_{ik} \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_k).\end{aligned}$$

Beschränkt man sich auf elektrische Felder in einer Polarisationsrichtung, kann man die Vektoren $\hat{\vec{E}}(t)$ und $\vec{\mu}_{i\mathbf{k}}$ durch Skalare ersetzen. Man erhält dann

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}(\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i) &= (\omega_j - \omega_i) \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i - \frac{i}{\hbar} \hat{E}(t) \cdot \sum_{\mathbf{k}} (\mu_{kj} \hat{a}_k^\dagger \hat{a}_i - \mu_{ik} \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_k) \\ \text{mit} \quad \hat{E}(t) &= \sum_{l=1}^P \left(\hat{\mathcal{E}}_l^{(+)}(t) e^{-i\nu_l t} + \hat{\mathcal{E}}_l^{(-)}(t) e^{i\nu_l t} \right).\end{aligned}\quad (5.8)$$

Von dieser Gleichung kommt man zur semiklassischen Näherung, indem man den Feldoperator $\hat{E}(t)$ durch ein klassisches Feld ersetzt. Multipliziert man beide Seiten der so erhaltenen Gleichung mit dem (zeitlich konstanten) Heisenberg-Dichteoperator $\hat{\rho}$ des kombinierten Systems aus Atom und Strahlungsfeld und bildet dann die Spur über alle möglichen Zustände dieses Gesamtsystems, erhält man

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt} \text{Tr}[\hat{\rho}(\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i)] &= (\omega_j - \omega_i) \text{Tr}[\hat{\rho}(\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i)] \\ &\quad - \frac{i}{\hbar} \hat{E}(t) \sum_{\mathbf{k}} \left(\mu_{kj} \text{Tr}[\hat{\rho}(\hat{a}_k^\dagger \hat{a}_i)] - \mu_{ik} \text{Tr}[\hat{\rho}(\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_k)] \right).\end{aligned}\quad (5.9)$$

Die hier auftretenden Spurausdrücke ändern sich nicht, wenn man sie im Schrödingerbild ausrechnet, in dem $\hat{\rho}$ zeitabhängig, $(\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i)$ aber ebenso wie die Basiszustände $|i\rangle$, $|j\rangle$ konstant ist; man erhält dann für den ersten Spurausdruck in (5.9)

$$\text{Tr}[\hat{\rho}(t) \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i] = \text{Tr}[\hat{\rho}(t) |j\rangle \langle i|] = \tilde{\rho}_{ij}(t).$$

Für die in Gleichung (5.9) folgenden Spurausdrücke bekommt man entsprechend $\tilde{\rho}_{ik}$ und $\tilde{\rho}_{kj}$. Damit hat man in (5.9) offenbar genau die früher benutzte semiklassische Gleichung (1.3) vor sich.

Soeben wurde gezeigt, wie man aus der voll quantenmechanischen Heisenberg-Operatorgleichung (5.8) die semiklassische Dichtematrixgleichung (1.3) gewinnen

kann. Als nächstes soll nun die Gleichung (5.8) ohne diese Approximation ganz formal mit der Gleichung (1.3) verglichen werden. Offenbar genügen die Operatoren $(\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i)$ zusammen mit den Feldoperatoren $\hat{\mathcal{E}}_l^{(+)}$, $\hat{\mathcal{E}}_l^{(-)}$ genau den gleichen Bewegungsgleichungen wie die Dichtematrixelemente $\tilde{\rho}_{ij}$ zusammen mit den klassischen Feldern $\mathcal{E}_l$, $\mathcal{E}_l^*$ in der semiklassischen Formel (1.3). Nennt man die verschiedenen Frequenzkomponenten der Operatorkombination $\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i$ im folgenden $\hat{\sigma}_{ji}^{(\nu)}$, benutzt also die Darstellung $\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i = \sum_{\nu} \hat{\sigma}_{ji}^{(\nu)} e^{-i\nu t}$ (mit zeitlich langsam variierenden Faktoren $\hat{\sigma}_{ji}^{(\nu)}$), kann man aus diesem Grund die in Kapitel 1 beschriebene Einsetzungsprozedur für die einzelnen Dichtematrix-Frequenzkomponenten $\rho_{ij}^{(\nu)}$ ohne weiteres auf die Frequenzkomponenten $\hat{\sigma}_{ji}^{(\nu)}$ der Operatoren $\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i$ in den voll quantenmechanischen Heisenberg-Bewegungsgleichungen übertragen. Man hat nur die Reihenfolge, mit der die verschiedenen Operatoren $\hat{\mathcal{E}}_l^{(+)}$, $\hat{\mathcal{E}}_l^{(-)}$ in den einzelnen Schritten auftauchen, genau zu beachten und korrekt ins Endergebnis zu übernehmen. Die letztendlich erhaltenen Gleichungen haben die Form

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\sigma}}_{nm}^{(\nu_{nmr})} + i(\omega_{nm} - \nu_{nmr})\hat{\sigma}_{nm}^{(\nu_{nmr})} \\ = \sum_{n'm'r'} \left(\sum_M \sum_{\lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_M} c_{M \lambda_1 \dots \lambda_M}^{n m r n' m' r'} \hat{\mathcal{E}}'_{\lambda_1} \dots \hat{\mathcal{E}}'_{\lambda_M} \right) \hat{\sigma}_{n'm'r'}^{(\nu_{n'm'r'})} \end{aligned} \quad (5.10)$$

mit den gleichen Koeffizienten c wie in der semiklassischen Gleichung (1.14). Wie dort können auch hier die Indexgrößen λ_i , $i = 1, M$ die Werte $\lambda_i = \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots \pm p$ annehmen. Die Größen $\hat{\mathcal{E}}'_{\lambda_i}$ sind nun jedoch als Operatoren definiert:

$$\hat{\mathcal{E}}'_{\lambda_i} = \begin{cases} \mathcal{E}_{\lambda_i}^{(+)} & \text{für } \lambda_i > 0; \\ \mathcal{E}_{|\lambda_i|}^{(-)} & \text{für } \lambda_i < 0. \end{cases}$$

5.2 Einbeziehung von Relaxationsprozessen

Die Bewegungsgleichungen (5.8), (5.10) reichen oft zur vollständigen Beschreibung eines Systems nicht aus. Es müssen beispielsweise Relaxationsprozesse aufgrund von Stößen, denen die aktiven Atome ausgesetzt sind, zusätzlich berücksichtigt werden. Auch bezieht man oft nur diejenigen Strahlungsfeldmoden, über die die Atome stark miteinander gekoppelt sind, explizit in ein quantisiertes Feld (5.3) ein und braucht dann für die spontanen Zerfallsprozesse in

die übrigen Moden eine phänomenologische Beschreibung. Der einfachste Weg zur Berücksichtigung solcher Relaxationsprozesse besteht darin, die Gleichungen (5.10) durch phänomenologische Dämpfungsterme, Übergangswahrscheinlichkeiten und Langevin-Rauschoperatoren zu ergänzen. Die erhaltene Gleichung läßt sich in der Form schreiben:^{58,67}

$$\dot{\hat{\sigma}}_{ij}^{(\nu_{ijr})} = \sum_{i'j'r'} M_{ijr,i'j'r'} \hat{\sigma}_{i'j'r'}^{(\nu_{i'j'r'})} + \sum_{i'j'} D_{ij,i'j'} \hat{\sigma}_{i'j'}^{(\nu_{i'j'})} + \hat{\Gamma}_{ij}^{(\nu_{ijr})}(t). \quad (5.11)$$

Der erste Teil dieser Gleichung bis hin zur ersten Summe mit den feldabhängigen Kopplungsfaktoren $M_{ijr,i'j'r'}$ entspricht lediglich einer anderen Schreibweise der Gleichung (5.10), während die zweite Summe mit den Kopplungsfaktoren $D_{ij,i'j'}$ den Einfluß der phänomenologischen Dämpfungsterme und Übergangswahrscheinlichkeiten widerspiegelt. Im allgemeinen sind von allen Kopplungsfaktoren $D_{ij,i'j'}$ nur die folgenden von Null verschieden:

$$D_{ij,ij}[\text{für } i \neq j] = -\gamma_{ij} \quad D_{ii,jj}[\text{für } i \neq j] = w_{ji} \quad D_{ii,ii} = -\sum_k w_{ik}. \quad (5.12)$$

Dabei bezeichnet γ_{ij} die Phasenrelaxationsrate, w_{ij} die Übergangsrate vom Zustand i zum Zustand j . Der letzte Term in Gleichung (5.11) soll den Erwartungswert Null haben

$$\langle \hat{\Gamma}_{ij}^{(\nu_{ijr})}(t) \rangle = 0, \quad (5.13)$$

damit man für den Erwartungswert der Ausdrücke in (5.11) das richtige Dämpfungs- und Relaxationsverhalten bekommt, wie es aus den semiklassischen Gleichungen bekannt ist. Andererseits ist es nötig, für $\hat{\Gamma}_{ij}^{(\nu_{ijr})}(t)$ eine nichtverschwindende Korrelation zuzulassen, damit die fundamentalen Beziehungen zwischen Produkten der quantenmechanischen Operatoren $\hat{\sigma}_{ij}^{(\nu_{ijr})}$ trotz der phänomenologisch eingeführten Kopplungsfaktoren $D_{ij,i'j'}$ gewahrt bleiben. Zerfällt die Korrelation der Langevinoperatoren $\hat{\Gamma}_{ij}^{(\nu_{ijr})}(t)$ relativ schnell verglichen mit den die Entwicklung der Mittelwerte $\langle \hat{\sigma}_{ij}^{(\nu_{ijr})}(t) \rangle$ beherrschende Zeitkonstanten $M_{ijr,i'j'r'}$ und $D_{ij,i'j'}$ (Markoffeigenschaft), kann man diese Korrelation in der Form schreiben

$$\langle \hat{\Gamma}_{ij}^{(\nu_{ijr})}(t) \hat{\Gamma}_{i'j'}^{(\nu_{i'j'})}(t') \rangle = G_{ij,i'j'}^{(\nu_{ijr} + \nu_{i'j'})} \delta(t - t'). \quad (5.14)$$

Zur Bestimmung der Faktoren G kann man beispielsweise von der Beziehung $\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \rangle = \delta_{ji} \langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \rangle$ ausgehen, die man aus den Fermi-Vertauschungsregeln (5.4) mit Hilfe der früher beim Ausdruck (5.7) gebrauchten Argumentation bekommt. Für die einzelnen Frequenzkomponenten lautet diese Beziehung

$$\langle \hat{\sigma}_{ij}^{(\nu_{ijr})} \hat{\sigma}_{i'j'}^{(\nu_{i'j'r'})} \rangle = \delta_{ji'} \langle \hat{\sigma}_{ij'}^{(\nu_{ijr} + \nu_{i'j'r'})} \rangle. \quad (5.15)$$

Die Forderung nach Wahrung dieser Beziehung genügt zur Festlegung der Faktoren G in (5.14). Man findet⁶⁷

$$G_{ij,i'j'}^{(\nu_{ijr} + \nu_{i'j'r'})} = \sum_{mn} \langle \delta_{ji'} D_{ij'mn} - \delta_{nj'} D_{ijmi'} - \delta_{mi} D_{i'j'jn} \rangle \langle \hat{\sigma}_{mn}^{(\nu_{ijr} + \nu_{i'j'r'})} \rangle. \quad (5.16)$$

5.3 Feldausbreitung

Am Schluß dieses Kapitels soll noch die Wellengleichung angegeben werden, die die Ausbreitung des elektrischen Feldes unter dem Einfluß der in den Atomen erzeugten Polarisation beschreibt. Sie lautet^{2,69,74}

$$\begin{aligned} \left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \hat{\vec{E}}(\vec{r}, t) &= \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \hat{\vec{P}}(\vec{r}, t) \\ &= \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \sum_{\alpha} \sum_{ij} \vec{\mu}_{ij} (\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j)_{(\alpha)} \delta(\vec{r} - \vec{r}_{(\alpha)}). \end{aligned} \quad (5.17)$$

Dabei ist $\hat{\vec{P}}(\vec{r}, t)$ der Operator für die Polarisation des Mediums, der Index α unterscheidet die verschiedenen Atome an den Raumpunkten $\vec{r}_{(\alpha)}$. Handelt es sich um Atome einer Sorte, hängen die Dipolmatrixelemente $\vec{\mu}_{ij}$ nicht von α ab. Die verschiedenen Frequenzkomponenten der auf der rechten Seite von (5.17) auftretenden Operator kombinationen $(\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j)_{(\alpha)}$ können nun mit der in Abschnitt 5.1 beschriebenen Methode aus den Frequenzkomponenten des Feldes $\hat{\vec{E}}(\vec{r}, t)$ am Ort $\vec{r}_{(\alpha)}$ des Atoms bestimmt werden. Jedoch ist die Gleichung (5.17) zu kompliziert, um sie allgemein lösen zu können. Man muß sich darauf beschränken, sie für Spezialfälle auszuwerten. So werden bei der folgenden Beschreibung des Hyper-Raman-Effekts die Atome näherungsweise als Kontinuum mit eindimensionaler Wellenausbreitung behandelt.

6. Voll quantenmechanische Beschreibung von Raman- und Hyper-Raman-Effekt für kleine Stokesfelder

6.1 Eindimensionale Kontinuumsbeschreibung für Raman- und Hyper-Raman-Effekt

Die im vorangegangenen Kapitel skizzierten Methoden sollen nun benutzt werden, um die Rolle der spontanen Prozesse bei Raman- und Hyper-Raman-Streuung genauer zu untersuchen. Dahinter steht die Absicht, Situationen wie die im dritten Kapitel diskutierten besser zu verstehen und dabei die am Schluß des vierten Kapitels erörterten Beschränkungen einer halbklassisch orientierten Betrachtungsweise zu überwinden. In dem hier interessierenden Fall, daß sich die beteiligten Felder allesamt mit Lichtgeschwindigkeit c in einem schmalen Winkelbereich entlang der $+z$ -Achse ausbreiten, erhält man eine besonders einfache Beschreibung, wenn man neben der räumlichen Koordinate z anstelle der gewöhnlichen, für alle Raumpunkte synchron verlaufenden Zeit t die retardierte Zeit $\tau = t - z/c$ verwendet.^{2,56} Die bei dieser Art der Ausbreitung wichtigsten Terme in (5.1) legen es dann nahe, das elektrische Feld im gesamten Raum in der Form anzusetzen

$$\hat{E}(\vec{r}, \tau) = \hat{\mathcal{E}}_P^{(+)}(\vec{r}, \tau) e^{-i\nu_P \tau} + \hat{\mathcal{E}}_P^{(-)}(\vec{r}, \tau) e^{i\nu_P \tau} + \hat{\mathcal{E}}_S^{(+)}(\vec{r}, \tau) e^{-i\nu_S \tau} + \hat{\mathcal{E}}_S^{(-)}(\vec{r}, \tau) e^{i\nu_S \tau}. \quad (6.1)$$

Die ersten beiden Terme kennzeichnen das Pump-, die letzten beiden das Stokesfeld; ν_P und ν_S sind die (Winkel)frequenzen des Pump- bzw. Stokesfeldes. Da das Pumpfeld sehr intensiv ist, kann man den zugehörigen Operator durch seinen Erwartungswert ersetzen und somit das Pumpfeld als klassisches Feld beschreiben. Wir gehen hier davon aus, daß als Pumpfeld eine (im allgemeinen zeitlich modulierte) linear polarisierte ebene Welle in $+z$ -Richtung in das System eingestrahlt wird. Die Absorption der Pumpstrahlung, die in den in Abschnitt 2.5 geschilderten Experimenten tatsächlich keine große Rolle spielt, sowie Verzerrungen der Wellenfront beispielsweise durch Selbstfokussierungseffekte werden vollkommen vernachlässigt. So wird das Pumpfeld durch eine klassische Amplitude $\mathcal{E}_P(\tau)$ beschrieben, die lediglich eine vorgegebene Funktion der retardierten Zeit τ ist.

Für das voll quantenmechanisch zu behandelnde Stokesfeld ist die Situation komplizierter. Bei einem nicht von außen vorgegebenen, sondern während des Verstärkungsprozesses im Medium entstehenden Feld hängt die Möglichkeit einer einfachen Beschreibung stark von der räumlichen Anordnung des verstärkenden Mediums ab. Um zu einer quasi-eindimensionalen Beschreibung zu kommen, in der das Feld im wesentlichen nur noch von der z -Koordinate, nicht aber von der x - und y -Koordinate abhängt, wird das Medium als langer, dünner Zylinder mit in z -Richtung orientierter Achse vorausgesetzt. Wählt man seine Fresnelzahl F größer als eins, wird die Situation dadurch kompliziert, daß sich nun auch außeraxiale Moden mit geringen Verlusten ausbreiten können, was zu einer ungleichmäßigen transversalen Feldverteilung führt.

Um die außeraxialen Moden zu unterdrücken, könnte man zu kleineren Fresnelzahlen übergehen. Jedoch erhält man bei sehr kleinen Fresnelzahlen schließlich auch für die auf der Zylinderachse konzentrierten Moden eine so starke radiale Variation des Feldes und derart hohe Beugungsverluste, daß von einem wirklich eindimensionalen Problem wiederum keine Rede mehr sein kann. Als Kompromiß soll hier wie in den meisten bisher veröffentlichten Arbeiten über Superfluoreszenz^{68–72} oder nichtresonante Ramanstreuung,^{73,74} die es gleichfalls mit der Verstärkung spontan entstehender Felder zu tun haben und die im übrigen in Abschnitt 6.4 noch diskutiert werden, eine Fresnelzahl von eins gewählt werden

$$F = \frac{A}{L\lambda_s} = 1.$$

Hier kennzeichnet A die Querschnittsfläche, L die Länge des Zylinders und λ_s die Stokes-Wellenlänge. Dabei wird der Durchmesser des Zylinders als klein gegen die Zylinderlänge, aber als groß gegen die Stokes-Wellenlänge vorausgesetzt $L \gg A^{\frac{1}{2}} \gg \lambda_s$.

Um die voll quantenmechanischen Gleichungen des Raman- oder Hyper-Raman-Effektes zu erhalten, geht man von der Beziehung (5.11) aus. Den Wert der Koeffizienten M und D kann man dabei aus den semiklassischen Gleichungen (2.6) übernehmen. Als Ausgangspunkt für den im nächsten Abschnitt dargestellten bezüglich des Stokesfeldes linearisierten Ansatz benötigt man insbesondere die Operatorentsprechungen der Gleichungen (2.6 e, f). Verwendet man wie beim Feldansatz (6.1)

die Größe τ als Zeitkoordinate, lauten sie für ein einzelnes Atom mit Atomindex α

$$\begin{aligned}\dot{\hat{\sigma}}_{31(\alpha)}(\tau) &= -(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)\hat{\sigma}_{31(\alpha)}(\tau) - \frac{i}{\hbar}[\vec{\mu}_{23} \cdot \hat{\vec{\mathcal{E}}}_s(\vec{r}_{(\alpha)}, \tau)]\hat{\sigma}_{21(\alpha)}(\tau) \\ &\quad - i\nu_{21}^*\hat{\sigma}_{32(\alpha)}(\tau) + \hat{\Gamma}_{31(\alpha)}(\tau) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{32(\alpha)}(\tau) &= -(\gamma_{23} - i\delta)\hat{\sigma}_{32(\alpha)}(\tau) - \frac{i}{\hbar}[\vec{\mu}_{23} \cdot \hat{\vec{\mathcal{E}}}_s(\vec{r}_{(\alpha)}, \tau)](\hat{\sigma}_{22(\alpha)}(\tau) - \hat{\sigma}_{33(\alpha)}(\tau)) \\ &\quad - i\nu_{21}\hat{\sigma}_{31(\alpha)}(\tau) + \hat{\Gamma}_{32(\alpha)}(\tau).\end{aligned}\tag{6.2}$$

Um eine eindimensionale Kontinuumsbeschreibung zu erhalten, mittelt man die auf die einzelnen Atome bezogenen Operatoren über Zylinderscheiben mit einer Dicke Δz , die einerseits klein ist gegen die charakteristische Länge, über die das Feld merklich verstärkt wird, andererseits aber noch so groß, daß jede Scheibe noch viele Atome enthält. Ein Verfahren, das von den eben genannten Arbeiten^{68–74} übernommen wurde. Resultat des Mittlungsprozesses sind Operatoren, die nur noch von der z -Koordinate des Scheibenmittelpunktes und von der retardierten Zeit τ abhängen:

$$\hat{\sigma}_{ij}(z, \tau) = \frac{1}{N A \Delta z} \sum_{\alpha \text{ in } \Delta z \text{ um } z} \hat{\sigma}_{ij(\alpha)}(\tau) \tag{6.3}$$

$$\hat{\Gamma}_{ij}(z, \tau) = \frac{1}{N A \Delta z} \sum_{\alpha \text{ in } \Delta z \text{ um } z} \hat{\Gamma}_{ij(\alpha)}(\tau) \tag{6.4}$$

$$\hat{\vec{\mathcal{E}}}_s(z, \tau) = \frac{1}{N A \Delta z} \sum_{\alpha \text{ in } \Delta z \text{ um } z} \hat{\vec{\mathcal{E}}}_s(\vec{r}_{(\alpha)}, \tau). \tag{6.5}$$

Hier bedeutet N die Dichte der Atome im Medium. Mittelt man die Gleichungen (6.2) über alle Atome in einer Scheibe und ersetzt den Mittelwert von Produkten $\hat{\vec{\mathcal{E}}}_s(\vec{r}_{(\alpha)}, \tau) \hat{\sigma}_{ij(\alpha)}(\tau)$ durch Produkte aus Mittelwerten (6.5) und (6.3), erhält man

$$\begin{aligned}\dot{\hat{\sigma}}_{31}(z, \tau) &= -(\gamma_{13} - i\Delta - i\delta)\hat{\sigma}_{31}(z, \tau) - \frac{i}{\hbar}[\vec{\mu}_{23} \cdot \hat{\vec{\mathcal{E}}}_s(z, \tau)]\hat{\sigma}_{21}(z, \tau) \\ &\quad - i\nu_{21}^*\hat{\sigma}_{32}(z, \tau) + \hat{\Gamma}_{31}(z, \tau) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{32}(z, \tau) &= -(\gamma_{23} - i\delta)\hat{\sigma}_{32}(z, \tau) - \frac{i}{\hbar}[\vec{\mu}_{23} \cdot \hat{\vec{\mathcal{E}}}_s(z, \tau)](\hat{\sigma}_{22}(z, \tau) - \hat{\sigma}_{33}(z, \tau)) \\ &\quad - i\nu_{21}\hat{\sigma}_{31}(z, \tau) + \hat{\Gamma}_{32}(z, \tau).\end{aligned}\tag{6.6}$$

Jetzt sollen noch die Erwartungswerte sowie die Auto- und Kreuzkorrelationsfunktionen der Kontinuums-Langevinoperatoren $\hat{\Gamma}_{31}$ und $\hat{\Gamma}_{32}$ berechnet werden. Wegen der Bedingung (5.13) hat man offenbar

$$\langle \hat{\Gamma}_{31}(z, \tau) \rangle = 0 \quad \langle \hat{\Gamma}_{32}(z, \tau) \rangle = 0. \quad (6.7)$$

Für die Korrelationsfunktionen erhält man anhand der Definition (6.4)

$$\begin{aligned} \langle \hat{\Gamma}_{ij}(z, \tau) \hat{\Gamma}_{i'j'}(z', \tau') \rangle &= \left(\frac{1}{NA\Delta z} \right)^2 \sum_{\substack{\alpha \text{ in } \Delta z \\ \text{um } z}} \sum_{\substack{\alpha \text{ in } \Delta z \\ \text{um } z'}} \langle \hat{\Gamma}_{ij(\alpha)}(\tau) \hat{\Gamma}_{i'j'(\alpha)}(\tau') \rangle \\ &= \left(\frac{1}{NA\Delta z} \right)^2 \sum_{\substack{\alpha \text{ in } \Delta z \text{ um } z \\ \text{und } \alpha \text{ in } \Delta z \text{ um } z'}} \langle \hat{\Gamma}_{ij(\alpha)}(\tau) \hat{\Gamma}_{i'j'(\alpha)}(\tau') \rangle. \end{aligned} \quad (6.8)$$

Hier wurde ausgenutzt, daß die Langevinoperatoren verschiedener Atome nicht korreliert sind. Die zuletzt auftretende Summe besteht aus so vielen gleich großen Gliedern, wie der Schnitt der Zylinderscheiben um z und um z' Atome enthält. Die Anzahl M dieser Glieder kann entsprechend der Formel

$$\begin{aligned} M(z, z') &= \begin{cases} NA(\Delta z - |z - z'|) & \text{für } |z - z'| < \Delta z; \\ 0 & \text{sonst;} \end{cases} \\ &\longrightarrow NA(\Delta z)^2 \delta(z - z') \quad \text{für } \Delta z \rightarrow 0 \end{aligned}$$

für kleine Δz durch eine Deltafunktion ausgedrückt werden. Damit erhält man

$$\langle \hat{\Gamma}_{ij}(z, \tau) \hat{\Gamma}_{i'j'}(z', \tau') \rangle = \frac{1}{NA} \delta(z - z') \langle \hat{\Gamma}_{ij(\alpha)}(\tau) \hat{\Gamma}_{i'j'(\alpha)}(\tau') \rangle \Big|_{\alpha \text{ in } \Delta z \text{ um } z}$$

Rechts stehen die Korrelationsfunktionen für die Langevinoperatoren der einzelnen Atome, die nach Gleichung (5.14) und (5.16) berechnet werden können. Für die Anwendung auf Raman- und Hyper-Raman-Effekt beschränken wir uns im folgenden auf Relaxationsübergänge zwischen den Niveaus $|1\rangle$, $|2\rangle$ und $|3\rangle$. Nimmt man dann

noch gleiche Werte für die beiden Phasenrelaxationskoeffizienten γ_{13} und γ_{23} an, $\gamma_{13} = \gamma_{23} = \gamma_{ph}$, folgt aus der Gestalt der Dämpfungsmatrix (5.12)

$$\begin{aligned}\langle \hat{\Gamma}_{13}(z, \tau) \hat{\Gamma}_{31}(z', \tau') \rangle &= \frac{1}{NA} [w_{21} \langle \hat{\sigma}_{22} \rangle + w_{31} \langle \hat{\sigma}_{33} \rangle + 2\gamma_{ph} \langle \hat{\sigma}_{11} \rangle] \delta(z - z') \delta(\tau - \tau') \\ \langle \hat{\Gamma}_{23}(z, \tau) \hat{\Gamma}_{32}(z', \tau') \rangle &= \frac{1}{NA} (-w_{21} - w_{31} + 2\gamma_{ph}) \langle \hat{\sigma}_{22} \rangle \delta(z - z') \delta(\tau - \tau') \\ \langle \hat{\Gamma}_{23}(z, \tau) \hat{\Gamma}_{31}(z', \tau') \rangle &= \frac{1}{NA} (-\gamma_{21} + 2\gamma_{ph}) \langle \hat{\sigma}_{21} \rangle \delta(z - z') \delta(\tau - \tau').\end{aligned}\tag{6.9}$$

Sieht man einmal von der Behandlung stationärer Zustände ab, beginnt man mit der Auswertung des Differentialgleichungssystems (6.6) im allgemeinen zu einem festen Zeitpunkt, für das Folgende auf $\tau = 0$ festgelegt. Es wird angenommen, daß vor diesem Zeitpunkt keine Stokesstrahlung auf das System einwirkt. Dementsprechend verlangt man, daß für $\tau = 0$ die Erwartungswerte derjenigen Komponenten $\hat{\sigma}_{ij}$ verschwinden, deren Frequenz die Stokesfrequenz enthält. Dies betrifft, gibt man die im vorangehenden meist weggelassene Frequenz zur Erinnerung ausnahmsweise wieder explizit an, vor allem $\hat{\sigma}_{31(\alpha)}^{(2\nu_p - \nu_s)}$, $\hat{\sigma}_{32(\alpha)}^{(\nu_s)}$ und ihre Konjugierten:

$$\langle \hat{\sigma}_{31(\alpha)}(\tau = 0) \rangle = 0 \quad \langle \hat{\sigma}_{32(\alpha)}(\tau = 0) \rangle = 0.\tag{6.10}$$

Weiter wird verlangt, daß die entsprechenden Operatoren verschiedener Atome nicht korreliert sind. Daher kann man die bei Gleichung (6.8) gebrauchte Argumentation auch auf die Korrelation der Kontinuumsoperatoren (6.3) anwenden und erhält für $i, j = 1, 2$

$$\begin{aligned}\langle \hat{\sigma}_{i3}(z, \tau = 0) \hat{\sigma}_{3j}(z', \tau = 0) \rangle &= \frac{1}{NA} \delta(z - z') \langle \hat{\sigma}_{i3(\alpha)}(\tau = 0) \hat{\sigma}_{3j(\alpha)}(\tau = 0) \rangle \Big|_{\alpha \text{ in } \Delta z \text{ um } z} \\ &= \frac{1}{NA} \langle \hat{\sigma}_{ij}(z, \tau = 0) \rangle \delta(z - z').\end{aligned}$$

Im letzten Schritt wurde (5.15) benutzt. Neben den unmittelbar aus (6.10) zu erhaltenden Erwartungswerten

$$\langle \hat{\sigma}_{31}(z, \tau = 0) \rangle = 0 \quad \langle \hat{\sigma}_{32}(z, \tau = 0) \rangle = 0\tag{6.11}$$

braucht man für das folgende die Korrelationsfunktionen

$$\begin{aligned}\langle \hat{\sigma}_{13}(z, \tau=0) \hat{\sigma}_{31}(z', \tau=0) \rangle &= \frac{1}{NA} \langle \hat{\sigma}_{11}(z, \tau=0) \rangle \delta(z - z') \\ \langle \hat{\sigma}_{23}(z, \tau=0) \hat{\sigma}_{32}(z', \tau=0) \rangle &= \frac{1}{NA} \langle \hat{\sigma}_{22}(z, \tau=0) \rangle \delta(z - z') \\ \langle \hat{\sigma}_{23}(z, \tau=0) \hat{\sigma}_{31}(z', \tau=0) \rangle &= \frac{1}{NA} \langle \hat{\sigma}_{21}(z, \tau=0) \rangle \delta(z - z').\end{aligned}\quad (6.12)$$

Berechnet man Korrelationsfunktionen höherer Ordnung wie beispielsweise

$$\begin{aligned}\langle \hat{\sigma}_{i_1 3}(z, \tau=0) \hat{\sigma}_{i_2 3}(z, \tau=0) \dots \hat{\sigma}_{i_n 3}(z, \tau=0) \\ \hat{\sigma}_{3 j_1}(z, \tau=0) \hat{\sigma}_{3 j_2}(z, \tau=0) \dots \hat{\sigma}_{3 j_n}(z, \tau=0) \rangle\end{aligned}$$

in analoger Weise als Summe höherer Korrelationsfunktionen der einzelnen atomaren Operatoren, findet man, daß alle Produkte mit von Null verschiedenem Erwartungswert entweder keinen oder aber zwei Operatoren desselben Atoms enthalten. Für den Fall, daß die betrachteten Zylinderscheiben jeweils viel mehr Atome enthalten, als Operatoren in jedem dieser Produkte vorkommen, $NA \Delta z \gg n$, genügen die Kontinuumsoperatoren $\hat{\sigma}_{ij}(z, \tau=0)$ daher der Gaußeigenschaft, die für eine Gesamtheit beliebiger Operatoren $\hat{A}_k$ mit $\langle \hat{A}_k \rangle = 0$, $k = 1, 2, \dots, 2n$ in der Form geschrieben werden kann

$$\langle \hat{A}_1 \hat{A}_2 \dots \hat{A}_{2n} \rangle = \sum \langle \hat{A}_{k_1} \hat{A}_{k_2} \rangle \langle \hat{A}_{k_3} \hat{A}_{k_4} \rangle \dots \langle \hat{A}_{k_{2n-1}} \hat{A}_{k_{2n}} \rangle; \quad (6.13)$$

wobei die Summation über alle verschiedenen Möglichkeiten erfolgt, die Kette der Operatoren $\hat{A}_1 \hat{A}_2 \dots \hat{A}_{2n}$ in Paare $\hat{A}_{k_i} \hat{A}_{k_{i+1}}$ mit $k_i < k_{i+1}$, $i = 1, 3, \dots, 2n-1$ zu zerlegen. Die Gaußeigenschaft (6.13) wird im allgemeinen auch für die Langevinoperatoren $\hat{\Gamma}_{ij}(z, \tau)$ vorausgesetzt,^{58,67} so daß auch hier die statistischen Eigenschaften vollständig durch die oben angegebenen Korrelationsfunktionen zweiter Ordnung bestimmt sind.

Analog wie oben die Bewegungsgleichungen der Atome (6.2) muß auch die Ausbreitungsgleichung für das Stokesfeld über eine Zylinderscheibe der Dicke Δz gemittelt werden. Man nimmt dann an, daß sich die gemittelten Amplituden (6.5) des Feldes (6.1) $\hat{\mathcal{E}}_s^{(+)}(z, \tau)$ und $\hat{\mathcal{E}}_s^{(-)}(z, \tau)$ als Funktion von z und τ nur langsam gegen

$k_s = \nu_s/c$ bzw. ν_s ändern. Durch Vergleich der mit ν_s oszillierenden Frequenzkomponenten findet man dann die Gleichung für die Ausbreitung des Stokesfeldes in z -Richtung

$$\frac{\partial}{\partial z} \hat{\mathcal{E}}^{(+)}(z, \tau) = \frac{iN\nu_s}{2c\epsilon_0} \vec{\mu}_{32} \hat{\sigma}_{32}(z, \tau). \quad (6.14)$$

Damit ist der Übergang zu den Operatoren der eindimensionalen Kontinuumsbeschreibung abgeschlossen. Im weiteren Verlauf der Arbeit wird sich zeigen, daß man alle interessierenden Aussagen über das Stokesfeld allein aufgrund der Materialgleichungen (6.6), der Feldgleichung (6.14) sowie der Fluktuationskenngößen (6.7), (6.9), (6.11), (6.12) mit der Gaußeigenschaft (6.13) gewinnen kann, ohne noch einmal auf die mikroskopische Beschreibung der einzelnen Atome zurückgreifen zu müssen.

6.2 Näherung für kleine Stokesfelder

Es soll nun versucht werden, die Materialgleichungen (6.6) zusammen mit der Ausbreitungsgleichung (6.14) analytisch zu lösen. Bisher wurden schon einige Näherungen gemacht, von denen die Beschränkung auf eine eindimensionale Feldausbreitung in $+z$ -Richtung die wichtigste war; weiterhin wurde die Strahlung des Pumplasers im Medium als nicht abgeschwächte ebene Welle behandelt. Um für Material- und Ausbreitungsgleichung ein lineares Differentialgleichungssystem zu bekommen, ersetzt man nun in den Materialgleichungen (6.6) die Operatoren $\hat{\sigma}_{22}(z, \tau)$, $\hat{\sigma}_{33}(z, \tau)$ und $\hat{\sigma}_{21}(z, \tau)$ durch die Erwartungswerte $\langle \hat{\sigma}_{22}(z, \tau) \rangle$, $\langle \hat{\sigma}_{33}(z, \tau) \rangle$ und $\langle \hat{\sigma}_{21}(z, \tau) \rangle$, die sich bei fehlendem Stokesfeld allein unter dem Einfluß von Pumpfeld und atomarer Relaxation einstellen. Diese Erwartungswerte können entsprechend den Erläuterungen zu Formel (5.13) durch semiklassische Rechnung bestimmt werden.

Der vollständige Satz semiklassischer Gleichungen (2.6) zeigt allerdings für starke Stokesfelder eine Änderung der genannten Erwartungswerte gegenüber den Werten ohne Stokesfeld. Es ist dies der Bereich atomarer Sättigungserscheinungen, wo die angegebene Linearisierung versagt. Jedoch spielen dann andererseits Quantenfluktuationen, die im Verlauf der weiteren Entwicklung noch auftreten, praktisch keine Rolle mehr, so daß man in diesem Fall semiklassisch rechnen kann. Man kann damit das dieser Arbeit zugrundeliegende Gesamtproblem in zwei Teile zerlegen. Da am Beginn des Hyper-Raman-Mediums bei $z = 0$ im allgemeinen kein großes

Stokes-Feld vorliegt (siehe die Abschätzung in Abschnitt 3.2), muß man hier voll quantenmechanisch rechnen, kann aber die im vorigen Absatz angegebene Linearisierung für das Medium benutzen. Man erhält auf diese Weise ein mit der Koordinate z immer schneller anwachsendes Feld. Ist dieses Feld für einen gewissen Wert $z_1 > 0$ zwar noch so klein, daß es keine merklichen Änderungen von $\langle \hat{\sigma}_{22}(z, \tau) \rangle$, $\langle \hat{\sigma}_{33}(z, \tau) \rangle$ und $\langle \hat{\sigma}_{21}(z, \tau) \rangle$ hervorruft, aber doch schon so groß, daß der Einfluß von Quantenfluktuationen auf das weitere Anwachsen des Feldes vernachlässigt werden kann, kann man von diesem Punkt an zu größeren z -Werten hin semiklassisch weiterrechnen. Die voll quantenmechanische Behandlung in linearisierter Fassung, die wir zunächst in Angriff nehmen, hat also auch zum Ziel, die Felder zu bestimmen, die man für eine semiklassische Weiterführung der Rechnung in den nichtlinearen Bereich hinein benötigt.

In der folgenden Rechnung sollen nur Stokesfelder mit einer Polarisierung parallel zum Dipolmatrixelement $\vec{\mu}_{ij}$ betrachtet werden, so daß der in den Materialgleichungen (6.6) vorkommende Operator für die halbe Stokes-Rabifrequenz $\hat{\nu}_{23}(z, \tau) = [\vec{\mu}_{23} \cdot \hat{\mathcal{E}}_s(z, \tau)]/\hbar$ in skalarer Form $\hat{\nu}_{23}(z, \tau) = [\mu_{23} \hat{\mathcal{E}}_s(z, \tau)]/\hbar$ geschrieben werden kann. Material- und Feldausbreitungsgleichung lauten dann

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\sigma}}_{31}(z, \tau) = & (-\gamma_{13} + i\Delta + i\delta)\hat{\sigma}_{31}(z, \tau) + i\hat{\nu}_{23}(z, \tau)\langle \hat{\sigma}_{21}(\tau) \rangle \\ & - i\nu_{21}^* \hat{\sigma}_{32}(z, \tau) + \hat{\Gamma}_{31}(z, \tau) \end{aligned} \quad (6.15a)$$

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\sigma}}_{32}(z, \tau) = & (-\gamma_{23} + i\delta)\hat{\sigma}_{32}(z, \tau) + i\hat{\nu}_{23}(z, \tau)[\langle \hat{\sigma}_{22}(\tau) \rangle - \langle \hat{\sigma}_{33}(\tau) \rangle] \\ & - i\nu_{21} \hat{\sigma}_{31}(z, \tau) + \hat{\Gamma}_{32}(z, \tau) \end{aligned} \quad (6.15b)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \hat{\nu}_{23}(z, \tau) = -i\kappa \hat{\sigma}_{32}(z, \tau) \quad \text{mit} \quad \kappa = \frac{N\nu_s |\mu_{23}|^2}{2\hbar c \epsilon_0}. \quad (6.16)$$

Die durch spitze Klammern gekennzeichneten Erwartungswerte werden entsprechend dem oben Gesagten bei verschwindendem Stokesfeld berechnet; ebenso wie Δ , δ und ν_{21} hängen sie nicht von z ab, können aber Funktionen der retardierten Zeit τ sein. Zur Lösung dieses Gleichungssystems soll von der Laplacetransformation^{75–79} Gebrauch gemacht werden. Definiert man die räumliche Laplacetransformierte beliebiger Größen $A(z, \tau)$ in der Form

$$A^L(s, \tau) = \mathcal{L}\{A(z, \tau)\} = \int_0^\infty e^{-sz} A(z, \tau) dz,$$

kann man Gleichung (6.16) umschreiben

$$\hat{\nu}_{23}^L(s, \tau) = \frac{1}{s} [\hat{\nu}_{23}(z=0, \tau) - i\kappa \hat{\sigma}_{32}^L(s, \tau)]. \quad (6.17)$$

Setzt man dies in die laplacetransformierten Materialgleichungen (6.15) ein und ordnet ein wenig um, bekommt man mit der Abkürzung $w(\tau) = \langle \hat{\sigma}_{22}(\tau) \rangle - \langle \hat{\sigma}_{33}(\tau) \rangle$

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\sigma}}_{31}^L(s, \tau) = & \left[-\gamma_{13} + i\Delta(\tau) + i\delta(\tau) \right] \hat{\sigma}_{31}^L(s, \tau) + \left[\frac{\kappa}{s} \langle \hat{\sigma}_{21}(\tau) \rangle - i\nu_{21}^*(\tau) \right] \hat{\sigma}_{32}^L(s, \tau) \\ & + \frac{i}{s} \langle \hat{\sigma}_{21}(\tau) \rangle \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau) + \hat{\Gamma}_{31}^L(s, \tau) \end{aligned} \quad (6.18a)$$

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\sigma}}_{32}^L(s, \tau) = & \left[-\gamma_{23} + i\delta(\tau) + \frac{\kappa}{s} w(\tau) \right] \hat{\sigma}_{32}^L(s, \tau) - i\nu_{21}(\tau) \hat{\sigma}_{31}^L(s, \tau) \\ & + \frac{i}{s} w(\tau) \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau) + \hat{\Gamma}_{32}^L(s, \tau). \end{aligned} \quad (6.18b)$$

6.3 Vergleich mit anderen Arbeiten über spontan initiierte Feldaufbauprozesse

Es ist nun an der Zeit, den in dieser Arbeit behandelten Aufbau des Stokesfeldes im linearen Bereich von Raman- und Hyper-Raman-Effekt anhand der erhaltenen Gleichungen (6.15) und (6.16) bzw. (6.17) und (6.18) mit spontan initiierten Feldaufbauprozessen in anderen Situationen zu vergleichen, die von verschiedenen Autoren bereits diskutiert worden sind.

Raymer und Mostowski^{73,74} beschränken sich zunächst auf den Fall der gewöhnlichen Ramanstreuung. Damit verschwindet nach den Feststellungen von Abschnitt 2.2 zunächst die Abhängigkeit der effektiven Verstimmungen Δ und δ von dem oft zeitabhängigen Pumpfeld und damit auf jeden Fall ihre Abhängigkeit von der Zeit τ . Der wichtigste Unterschied zu unserer Arbeit liegt darin, daß sich Raymer und Mostowski von vornherein ausschließlich auf den Fall nichtresonanter Einphotonenanregung beschränken. Das bedeutet, daß die Verstimmung Δ_1 stets betragsmäßig groß gegen die Relaxationsraten γ_{12} , γ_{13} und γ_{23} vorausgesetzt wird. Die Ramanstreustrahlung erwartet man in unserer Notation bei Frequenzen in der Umgebung von $\delta = -\Delta$ mit einer Bandbreite klein gegen $|\Delta|$. Raymer und Mostowski vernachlässigen weiterhin bei ihrer Rechnung alle Einflüsse des dynamischen

Stark-Effekts. Wie im Fall nichtresonanter Anregung naheliegend, gehen sie weiterhin davon aus, daß der Pumpvorgang keine merkliche Änderung der Besetzungszahlen der einzelnen atomaren Niveaus verursacht und haben entsprechend $\langle \sigma_{11} \rangle = 1$, $\langle \sigma_{22} \rangle = \langle \sigma_{33} \rangle = 0$. Um ihre Schlüsse nachzuvollziehen, kann man in den von uns aufgestellten allgemeineren Gleichungen (6.18) $w(\tau) = 0$ setzen und δ (diejenige Stokesverstimmung, die einem zeitlich konstanten $\hat{\nu}_{23}(s, \tau)$ zugeordnet ist) gleich $-\Delta$, der Frequenz, in deren Umgebung man die Ramanstokesstrahlung vermutet. Nimmt man dann von Gleichung (6.18a) die adiabatische Näherung, bekommt man

$$\hat{\sigma}_{32}^L(s, \tau) = -\frac{\nu_{21}}{\Delta} \sigma_{31}^L(s, \tau). \quad (6.19)$$

Setzt man dies in die Gleichung (6.18b) ein und vernachlässigt den Term $(|\nu_{21}|^2/\Delta)\sigma_{32}^L(s, \tau)$, der hier lediglich eine Frequenzverschiebung aufgrund des Starkeffekts ausdrücken würde, erhält man die lineare Differentialgleichung

$$\dot{\sigma}_{31}^L(s, \tau) = \left[-\gamma_{13} - \frac{\kappa}{s} \frac{\nu_{21}}{\Delta} \langle \hat{\sigma}_{21}(\tau) \rangle \right] \sigma_{31}^L(s, \tau) + \frac{i}{s} \langle \hat{\sigma}_{21}(\tau) \rangle \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau) + \hat{\Gamma}_{31}(s, \tau).$$

Da es sich um eine Differentialgleichung erster Ordnung handelt, kann man für den homogenen Anteil die Variablen separieren. Die inhomogene Gleichung löst man anschließend durch Variation der Konstanten und erhält nach Einsetzen in (6.19) und schließlich in (6.17) mit der Abkürzung

$$a(\tau) = -\frac{\kappa}{\Delta} \int_0^\tau \nu_{21}(\tau') \langle \hat{\sigma}_{21}(\tau') \rangle d\tau'$$

$$\begin{aligned} \hat{\nu}_{23}^L(s, \tau) &= \frac{1}{s} \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau) + i \frac{\kappa \nu_{21}}{s \Delta} \hat{\sigma}_{31}(s, \tau=0) e^{-\gamma_{13}\tau + \frac{1}{s}[a(\tau)]} \\ &+ i \frac{\kappa \nu_{21}}{s \Delta} \int_0^\tau \left[\frac{i}{s} \langle \hat{\sigma}_{21}(\tau') \rangle \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau') + \hat{\Gamma}_{31}(s, \tau') \right] e^{-\gamma_{13}(\tau-\tau') + \frac{1}{s}[a(\tau)-a(\tau')]} d\tau'. \end{aligned} \quad (6.20)$$

Da man die von s abhängigen Funktionen auf der rechten Seite der Gleichung in entsprechenden Tabellen⁷⁶⁻⁷⁹ als Laplacetransformierte der modifizierten Besselfunktionen wiederfindet

$$\mathcal{L} \left\{ \left(\frac{z}{a} \right)^{\frac{n}{2}} I_n(\sqrt{4az}) \right\} = \frac{1}{s^{(n+1)}} e^{\frac{a}{s}},$$

kann man den Ausdruck (6.20) unter Verwendung des Laplace-Faltungstheorems leicht in den Ortsraum zurücktransformieren

$$\begin{aligned}
 \hat{\nu}_{23}(z, \tau) = & \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau) + i \frac{\kappa\nu_{21}}{\Delta} e^{-\gamma_{13}\tau} \int_0^z \hat{\sigma}_{31}(z', \tau=0) I_0(\sqrt{4(z-z')a(\tau)}) dz' \\
 & - \frac{\kappa\nu_{21}}{\Delta} \sqrt{z} \int_0^\tau \langle \hat{\sigma}_{21}(\tau') \rangle \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau') e^{-\gamma_{13}(\tau-\tau')} \frac{I_1(\sqrt{4z[a(\tau)-a(\tau')]})}{\sqrt{a(\tau)-a(\tau')}} d\tau' \\
 & + i \frac{\kappa\nu_{21}}{\Delta} \int_0^\tau \int_0^z \hat{\Gamma}_{31}(z', \tau') e^{-\gamma_{13}(\tau-\tau')} I_0(\sqrt{4(z-z')[a(\tau)-a(\tau')]}) dz' d\tau'.
 \end{aligned} \tag{6.21}$$

Während Raymer und Mostowski ursprünglich ein Bezugssystem benutzten, das ganz auf ihren speziellen Fall zugeschnitten war, wird in unserer Darstellung deutlich, in welcher Weise die Beschränkung auf nichtresonante Anregung die Lösung des allgemeineren Problems vereinfacht hat. Die von Raymer und Mostowski gefundene Formel hat den großen Vorzug, daß sie für beliebigen zeitlichen Verlauf des eingestrahlten Pumpfeldes gilt. Voraussetzung einer solchen Behandlung ist jedoch, daß alle Operatoren bis auf einen adiabatisch eliminiert werden können und am Ende nur eine Differentialgleichung erster Ordnung übrigbleibt. Eine Voraussetzung, die auch im Fall der Superfluoreszenz erfüllt ist, der bereits für eine ganze Reihe von Konfigurationen studiert worden ist. Erwähnt seien hier insbesondere die Arbeiten von Glauber und Haake et al.⁶⁸⁻⁷⁰ sowie von Polder et al.⁷¹ sowie der Übersichtsartikel von Vrehen.⁷² Einen besonders engen Bezug zu der in unserer Arbeit behandelten Situation haben dabei die Konfigurationen mit „gleitender Anregung“, die beispielsweise von Hopf und Meystre⁸⁰ behandelt wurden. Dort geht man davon aus, daß jedes Atom aus einem entlang einer z-Achse angeordneten Ensemble jeweils zur Zeit $t = z/c$ in einen invertierten Zustand versetzt wird. Dieser Anfangszustand entspricht einer für alle Atome gleichen retardierten Zeit $\tau = 0$; für $\tau > 0$ kann sich dann ein der Übergangsfrequenz des Zweiniveausystems entsprechendes Feld entwickeln. In der von uns untersuchten Konfiguration erhält man eine ähnliche Situation, wenn man von einem einphotonenresonanten Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ ausgeht, den man zur Zeit $\tau = 0$ durch einen kurzen π -Pumpimpuls invertiert. Für Zeiten $\tau > 0$ soll dann kein Pumpfeld mehr wirken. Der Übergang

$|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ kann dann wie ein invertiertes Zweiniveausystem als Quelle des Feldes $\hat{\nu}_{23}$ dienen. Für $\tau > 0$ findet man in Gleichung (6.18a), die bei verschwindendem ν_{21} nicht mehr an (6.18b) gekoppelt ist, diejenige Differentialgleichung erster Ordnung, die über die Beziehung (6.17) letztendlich den Feldaufbau bestimmt.

In all diesen Fällen wird der Feldaufbau durch modifizierte Besselfunktionen bestimmt. Das Spektrum weist dann für geringe Verstärkungen eine einzelne Linie mit einem Lorentzprofil auf, das für größere Verstärkungen in ein Gaußprofil übergeht.

Anders ist die Situation, wenn man, wie im Fall der Raman- oder Hyper-Raman-Anregung in der Nähe der Resonanz, ein System mehrerer gekoppelter Differentialgleichungen übrigbehält, das sich nicht weiter reduzieren läßt. Für Medien, in denen es zu einem Anwachsen des Feldes durch stimulierte Emission kommt, sind derartige Probleme unseres Wissens nach bisher noch nicht behandelt worden. Eine Ausnahme bilden die Fälle, in denen man es lediglich mit spontaner Entstehung von Strahlung zu tun hat und wo Ausbreitungsvorgänge nicht entscheidend eingreifen. Hier gibt es eine Reihe von Arbeiten, die sich zunächst vor allem auf die Resonanzfluoreszenz in einem Ensemble von Zweiniveaumatomen beziehen.^{81–83} Bezeichnet man die beteiligten atomaren Zustände mit $|1\rangle$ und $|2\rangle$, kann man die sich entwickelnde Dynamik durch ein System von drei gekoppelten linearen Differentialgleichungen erster Ordnung zwischen den Operatoren $(\hat{\sigma}_{11} - \hat{\sigma}_{22})$, $\hat{\sigma}_{12}$, $\hat{\sigma}_{21}$ beschreiben.⁸² Es ist bekannt, daß das Fluoreszenzspektrum aus bis zu drei Linien besteht, deren Abstand im einfachsten Fall durch die Rabifrequenz des eingestrahlten Feldes gegeben ist. Verstärkungsphänomene, in unseren Gleichungen (6.18) durch s -abhängige Terme repräsentiert, treten dabei nicht auf.

6.4 Bestimmung der Laplacetransformierten der bei Raman- und Hyper-Raman-Effekt entstehenden Stokesfelder

In all den Fällen, in denen man nach der Elimination der adiabatisch folgenden Größen mehrere Differentialgleichungen übrigbehält, kann der homogene Anteil nicht mehr separiert werden. Ein solches Problem kann daher nicht mehr allgemein, sondern nur noch unter speziellen Voraussetzungen für die Koeffizienten dieses Differentialgleichungssystems gelöst werden. Im Fall der Gleichungen (6.18) soll nun im gesamten Bereich $z \geq 0$, $\tau > 0$ mit konstanten Koeffizienten gerechnet werden. Man

geht also davon aus, daß sich die durch das eingestrahlte Pumpfeld vorgegebenen Größen $\nu_{21}(\tau)$, $\Delta(\tau)$, $\delta(\tau)$ sowie die durch die semiklassischen Gleichungen (2.6 a-d) bestimmten Größen $w(\tau) = \langle \hat{\sigma}_{22}(\tau) \rangle - \langle \hat{\sigma}_{33}(\tau) \rangle$ sowie $\langle \hat{\sigma}_{21}(\tau) \rangle$ hier nicht ändern.

Zu der so getroffenen Festlegung kommen Rand- und Anfangsbedingungen. Am Anfang des Mediums bei $z = 0$ geht man von einem vorgegebenen eingestrahlten Stokesfeld $\nu_{23}(z=0, \tau)$ aus. Vor dem Zeitpunkt $\tau = 0$ soll kein merkliches Stokesfeld existieren, so daß die Polarisationsoperatoren $\hat{\sigma}_{31}(z, \tau=0)$ und $\hat{\sigma}_{32}(z, \tau=0)$ durch einen verschwindenden Erwartungswert (6.11) sowie eine Korrelation der Form (6.12) charakterisiert werden können.

Unter diesen Voraussetzungen soll nun das spontane Anschwingen des Stokesfeldes im Bereich $z \geq 0$, $\tau \geq 0$ untersucht werden. Das Ziel ist dabei eine allgemeine Lösung, die auch für Pump- und Stokesfeldfrequenzen in der Umgebung der jeweiligen atomaren Resonanzen gilt. Für das folgende ist es dabei zweckmäßig, $\delta = 0$ zu setzen, so daß die Verstimmung des Stokesfeldes allein durch die Zeitabhängigkeit von $\hat{\nu}_{23}(s, \tau)$ dargestellt wird. Um die Rechnung zu vereinfachen, wird ferner für γ_{13} und γ_{23} eine einheitliche Phasenrelaxationskonstante $\gamma_{ph} = \gamma_{13} = \gamma_{23}$ angenommen. Die Größe γ_{12} , die in den Gleichungen (6.18) nicht direkt vorkommt, kann dagegen andere Werte aufweisen. Zunächst wird nun die Lösung für den homogenen Anteil des Gleichungssystems (6.18) gesucht. Da es sich um ein System linearer Differentialgleichungen mit konstanten Koeffizienten handelt, ist dies sehr einfach. Faßt man $\hat{\sigma}_{31}$ und $\hat{\sigma}_{32}$ als Elemente eines Spaltenvektors zusammen, liefert der Ansatz

$$\begin{pmatrix} \hat{\sigma}_{31}^L(s, \tau) \\ \hat{\sigma}_{32}^L(s, \tau) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c_1(s) \\ c_2(s) \end{pmatrix} e^{\lambda(s) \tau} \quad (6.22)$$

das folgende Gleichungssystem

$$\begin{aligned} (-\gamma_{ph} - i\Delta + \lambda) c_1 + \left(\frac{\kappa}{s} \langle \hat{\sigma}_{21} \rangle - i\nu_{21}^* \right) c_2 &= 0 \\ -i\nu_{21} c_1 - \left(\gamma_{ph} - \frac{\kappa}{s} w + \lambda \right) c_2 &= 0. \end{aligned} \quad (6.23)$$

Eine nichttriviale Lösung existiert nur dann, wenn seine Determinante verschwindet. Diese Bedingung führt auf eine quadratische Gleichung mit den beiden Lösungen

$$\begin{aligned} \lambda_1 &= -\gamma_{ph} + i\frac{\Delta}{2} + \frac{\kappa w}{2s} + D \\ \lambda_2 &= -\gamma_{ph} + i\frac{\Delta}{2} + \frac{\kappa w}{2s} - D \end{aligned} \quad (6.24)$$

mit der Abkürzung

$$D = \sqrt{\left(\frac{\kappa w}{2s}\right)^2 - i\Delta \frac{\kappa w}{2s} - i\nu_{21} \frac{\kappa}{s} \langle \hat{\sigma}_{21} \rangle - \left(\frac{\Delta}{2}\right)^2 - |\nu_{21}|^2}.$$

Nun setzt man λ_1 in das Gleichungssystem (6.23) ein und erhält eine Lösung mit den Komponenten c_1 und c_2 . Schreibt man sie unter Einschluß des Faktors $e^{\lambda(s)\tau}$ in der Form (6.22) als erste Spalte einer Matrix $\mathbf{Z}$ und ebenso die mit λ_2 zu erhaltende Lösung als zweite Spalte dieser Matrix, erhält man als Eigenlösungssystem der Gleichungen (6.18)

$$\mathbf{Z}(s, \tau) = \begin{pmatrix} \left(-\frac{\Delta}{2} - i\frac{\kappa w}{2s} + iD\right)e^{\lambda_1 \tau} & \left(-\frac{\Delta}{2} - i\frac{\kappa w}{2s} - iD\right)e^{\lambda_2 \tau} \\ \nu_{21}e^{\lambda_1 \tau} & \nu_{21}e^{\lambda_2 \tau} \end{pmatrix}.$$

Stellt man den inhomogenen Anteil des Gleichungssystems (6.18) als Spaltenvektor

$$\hat{\mathbf{d}} = \begin{pmatrix} \frac{i}{s} \langle \hat{\sigma}_{21} \rangle \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau) + \hat{\Gamma}_{31}^L(s, \tau) \\ \frac{i}{s} w \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau) + \Gamma_{32}^L(s, \tau) \end{pmatrix}$$

dar und sucht die Lösung des inhomogenen Differentialgleichungssystems in der Form

$$\hat{\boldsymbol{\sigma}} = \begin{pmatrix} \hat{\sigma}_{31}^L(s, \tau) \\ \hat{\sigma}_{32}^L(s, \tau) \end{pmatrix}$$

findet man durch Variation der Konstanten

$$\hat{\boldsymbol{\sigma}}(s, \tau) = \mathbf{Z}(s, \tau) \left[\int_0^\tau \mathbf{Z}^{-1}(s, \tau') \hat{\mathbf{d}}(s, \tau') d\tau' + \mathbf{Z}^{-1}(s, \tau=0) \hat{\boldsymbol{\sigma}}(s, \tau=0) \right].$$

Diese Lösung gibt in Gleichung (6.17) eingesetzt

$$\begin{aligned} \hat{\nu}_{23}^L(s, \tau) = & \frac{1}{s} \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau) + \kappa \int_0^\tau \left\{ \left(\frac{\kappa w^2}{2s^3} - i \frac{\nu_{21} \langle \hat{\sigma}_{21} \rangle}{s^2} - i \frac{w\Delta}{2s^2} \right) \frac{e^{\lambda_1(\tau-\tau')} - e^{\lambda_2(\tau-\tau')}}{2D} \right. \\ & \left. + \frac{w}{s^2} \frac{e^{\lambda_1(\tau-\tau')} + e^{\lambda_2(\tau-\tau')}}{2} \right\} \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau') d\tau' \\ & - i \frac{\kappa}{s} \int_0^\tau \left\{ \left(\frac{\kappa w}{2s} - i \frac{\Delta}{2} \right) \frac{e^{\lambda_1(\tau-\tau')} - e^{\lambda_2(\tau-\tau')}}{2D} + \frac{e^{\lambda_1(\tau-\tau')} + e^{\lambda_2(\tau-\tau')}}{2} \right\} \hat{\Gamma}_{32}^L(s, \tau') d\tau' \\ & - \frac{\kappa \nu_{21}}{s} \int_0^\tau \frac{e^{\lambda_1(\tau-\tau')} - e^{\lambda_2(\tau-\tau')}}{2D} \hat{\Gamma}_{31}^L(s, \tau') d\tau' - \frac{\kappa \nu_{21}}{s} \frac{e^{\lambda_1 \tau} - e^{\lambda_2 \tau}}{2D} \hat{\sigma}_{31}^L(s, \tau=0) \\ & - i \frac{\kappa}{s} \left\{ \left(\frac{\kappa w}{2s} - i \frac{\Delta}{2} \right) \frac{e^{\lambda_1 \tau} - e^{\lambda_2 \tau}}{2D} + \frac{e^{\lambda_1 \tau} + e^{\lambda_2 \tau}}{2} \right\} \hat{\sigma}_{32}^L(s, \tau=0). \end{aligned} \quad (6.25)$$

7. Umkehrung der Laplacetransformation für den Fall $\Delta = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle = 0$

Das Problem ist nun die Umkehrung der Laplacetransformation für die Greensfunktionen, die in der letzten Gleichung als Faktoren vor der halben Rabi-Frequenz $\hat{\nu}_{23}(z=0, \tau)$ des eingestrahlten Stokesfeldes oder vor den fluktuierenden Operatoren $\Gamma_{31}^L(s, \tau')$, $\hat{\Gamma}_{32}^L(s, \tau)$, $\hat{\sigma}_{31}^L(s, \tau=0)$, $\hat{\sigma}_{32}^L(s, \tau=0)$ stehen. Ein nicht ganz einfaches Problem, da diese Funktionen im Gegensatz zu den einfacher gebauten aus Gleichung (6.20) weder in den üblichen Laplacetransformationstabellen^{76–79} noch in anderen uns bekannten Arbeiten zu finden waren.

Wir werden später in Kapitel 9 eine analytische Methode entwickeln, mit der man aus den Formeln für die räumlich laplacetransformierten Greensfunktionen Formeln für die zeitlich fouriertransformierten Greensfunktionen gewinnen kann. Diese zeitlich fouriertransformierten Greensfunktionen haben eine ziemlich unmittelbare physikalische Bedeutung — man kann daraus beispielsweise recht direkt die Form des stationären Stokesspektrums ablesen —, können aber natürlich auch zur numerischen Berechnung der Greensfunktionen als Funktion von z und τ herangezogen werden.

Etwas mehr Einsicht in die Struktur der Greensfunktionen vermittelt auf der anderen Seite jedoch der Versuch, die Laplace-Rücktransformation direkt in Angriff zu nehmen. Ihm soll daher dieses Kapitel gewidmet sein. Um die in unserem recht allgemeinen Ansatz enthaltenen neuen Aspekte deutlich zu demonstrieren, die Rechnung aber dennoch übersichtlich zu halten, beschränken wir uns dabei auf den Fall $\Delta = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle = 0$ für $\tau \geq 0$. Diese Parameter sind bewußt als Kontrast zu den in Abschnitt 6.3 wiedergegebenen Festlegungen der Arbeiten von Raymer und Moskowsky gewählt. Während Raymer und Moskowsky eine große Pumpverstimmung Δ voraussetzen, rechnen wir hier mit exakt resonanter Anregung. Während Raymer und Moskowsky ausschließlich die Größe $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle$ als die Verstärkung treibenden Term im Gleichungssystem (6.18) berücksichtigen und die Inversion w des Stokesüberganges gleich Null setzen, was für ihren Fall großer Verstimmung durchaus realistisch ist, setzen wir $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle$ gleich Null und berücksichtigen nur den Term mit w . Ein zusätzliches Motiv für ein solches Vorgehen liefern die Zahlenverhältnisse bei den in Kapitel 3 angesprochenen Hyper-Raman-Experimenten mit nahezu resonanter Anregung. Wie am Schluß von Abschnitt 3.4 bemerkt, spielt dort der Beitrag der Zweiphotonenkohärenz $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle$ zur linearen Stokesverstärkung verglichen

mit dem von der Inversion w herrührenden Beitrag kaum eine Rolle. Im folgenden setzt man also $\Delta = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle = 0$ und benutzt die Abkürzungen

$$a = \frac{1}{2} \kappa w \tau \quad c = |\nu_{21}| \tau.$$

Die Laplace-Rücktransformation der in (6.25) auftretenden Greensfunktionen führt dann auf folgende Typen von Ausdrücken

$$\begin{aligned} \mathcal{L}^{-1} \left\{ \frac{1}{s} \right\} &= 1 \\ \mathcal{L}^{-1} \left\{ \frac{1}{s^n} e^{\frac{a}{s}} \frac{e^{D\tau} + e^{-D\tau}}{2} \right\} & \quad n = 1, 2 \\ \mathcal{L}^{-1} \left\{ \frac{1}{s^n} e^{\frac{a}{s}} \frac{e^{D\tau} - e^{-D\tau}}{2D} \right\} & \quad n = 1, 2, 3 \end{aligned}$$

wobei $D\tau = \sqrt{\left(\frac{a}{s}\right)^2 - c^2}$ ist. Mit Hilfe des Ähnlichkeitssatzes für Laplacetransformationen lassen sich die zunächst von z , a und c abhängigen Rücktransformierten durch neue Funktionen von nur noch zwei Argumenten ausdrücken

$$\begin{aligned} F_n(az, c) &= a^{n-1} \mathcal{L}^{-1} \left\{ \frac{1}{s^n} e^{\frac{a}{s}} \frac{e^{D\tau} + e^{-D\tau}}{2} \right\} \quad n = 1, 2 \\ G_n(az, c) &= \frac{a^{n-1}}{\tau} \mathcal{L}^{-1} \left\{ \frac{1}{s^n} e^{\frac{a}{s}} \frac{e^{D\tau} - e^{-D\tau}}{2D} \right\} \quad n = 1, 2, 3. \end{aligned} \tag{7.1}$$

Durch Integration über z bzw. durch Ableitung nach c bekommt man die Relationen

$$\begin{aligned} F_{n+1}(az, c) &= \int_0^{az} F_n(u, c) du \quad G_{n+1}(az, c) = \int_0^{az} G_n(u, c) du \\ G_n(az, c) &= -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial c} F_n(az, c). \end{aligned} \tag{7.2}$$

Es ist damit möglich, beispielsweise aus $F_1(az, c)$ alle anderen interessierenden Funktionen zu erhalten. In allen Fällen, in denen man die beiden Summanden der Greensfunktionen in (7.1) getrennt rücktransformieren möchte, muß man sich zuvor darüber verständigen, welche Wurzel in der komplexen Ebene mit dem Ausdruck

$D\tau = \sqrt{\left(\frac{a}{s}\right)^2 - c^2}$ gemeint sein soll. Je nach Zweckmäßigkeit wird in dieser Arbeit wahlweise eine der beiden folgenden Konventionen verwendet. Bei der ersten schreibt man

$$D\tau = i\sqrt{c^2 - \left(\frac{a}{s}\right)^2} \quad \text{mit} \quad \operatorname{Re} \left[\sqrt{c^2 - \left(\frac{a}{s}\right)^2} \right] \geq 0. \quad (7.3)$$

Der zugehörige Schnitt in der komplexen s -Ebene ist in Abb. 12a schraffiert eingezeichnet. Setzt man die Funktion über den Schnitt hinweg auf das zweite Riemannsche Blatt analytisch fort, kommt man auf die Funktion $-D\tau$. Bei der zweiten Möglichkeit schreibt man

$$D\tau = \frac{1}{s}\sqrt{a^2 - c^2 s^2} \quad \text{mit} \quad \operatorname{Re} \left[\sqrt{a^2 - c^2 s^2} \right] \geq 0. \quad (7.4)$$

Der entsprechende Schnitt ist in Abb. 12b dargestellt. Neben den Schnitten sowie den Verzweigungspunkten $s = \pm \frac{a}{c}$ können die rückzutransformierenden Funktionen je nach Festlegung der Schnitte gegebenenfalls noch eine wesentliche Singularität im Punkt $s = 0$ aufweisen.

Im Anschluß an die vorangegangenen Erörterungen zur genaueren Eingrenzung des Problems sollen nun verschiedene, sich gegenseitig ergänzende Methoden zur konkreten Berechnung der Funktionen $F_n(az, c)$, $n = 1, 2$ und $G_n(az, c)$, $n = 1, 2, 3$ angegeben werden. In Abschnitt 7.1 wird für diese Funktionen eine Potenzreihendarstellung hergeleitet, was vor allem für kleine Argumentwerte az und c sinnvoll ist. Im darauf folgenden Abschnitt wird umgekehrt eine asymptotische Entwicklung für große az und c angegeben. Im Abschnitt 7.3 schließlich geht es um eine numerische Lösung auch für die Argumente im Zwischenbereich. Dort werden dann auch graphische Darstellungen der gesuchten Funktionen gezeigt.

7.1 Rücktransformation durch Potenzreihenentwicklung

Der Ausdruck $D\tau$ in der Festlegung (7.3) wird zunächst in eine binomische Reihe nach negativen Potenzen von s entwickelt,

$$D\tau = i\sqrt{c^2 - \left(\frac{a}{s}\right)^2} = ic + \frac{1}{2} \frac{1}{ic} \left(\frac{a}{s}\right)^2 - \frac{1}{8} \frac{1}{(ic)^3} \left(\frac{a}{s}\right)^4 + \frac{1}{16} \frac{1}{(ic)^5} \left(\frac{a}{s}\right)^6 - \dots$$

Sie konvergiert für $|s| > \frac{a}{c}$. Setzt man diese Reihe in die Potenzreihenentwicklung der Exponentialfunktion $e^{D\tau}$ ein, verfährt mit anderen Exponentialfunktionen

analog und ordnet (mit dem Computer) etwas um, schreibt sich die einfachste der rückzutransformierenden Funktionen

$$\begin{aligned}
 e^{\frac{a}{s}} \frac{e^{Dr} + e^{-Dr}}{2} &= \left[1 - \frac{1}{2}c^2 + \frac{1}{24}c^4 - \frac{1}{720}c^6 + \frac{1}{40320}c^8 - + \dots \right] \\
 &+ \left[1 - \frac{1}{2}c^2 + \frac{1}{24}c^4 - \frac{1}{720}c^6 + \frac{1}{40320}c^8 - + \dots \right] \frac{a}{s} \\
 &+ \left[1 - \frac{1}{3}c^2 + \frac{1}{40}c^4 - \frac{1}{1260}c^6 + \frac{1}{72576}c^8 - + \dots \right] \frac{a^2}{s^2} \\
 &+ \left[\frac{2}{3} - \frac{1}{6}c^2 + \frac{1}{90}c^4 - \frac{1}{3024}c^6 + \frac{1}{181440}c^8 - + \dots \right] \frac{a^3}{s^3} \\
 &+ \dots \\
 &= \sum_{i=0}^{\infty} d_i(c) \left(\frac{a}{s} \right)^i.
 \end{aligned} \tag{7.5}$$

Die ersten beiden der damit definierten Funktionen $d_i(c)$ identifiziert man mit dem Kosinus, $d_0(c) = d_1(c) = \cos c$. Weil die Reihe (7.5) in der linken Halbebene $\text{Re}(s) < -\frac{a}{c}$ konvergiert, kann man gliedweise rücktransformieren und erhält

$$F_n(az, c) = \sum_{i=0}^{\infty} d_i(c) \frac{(az)^{n-1+i}}{(n-1+i)!}. \tag{7.6}$$

Auf analoge Weise oder über die Relation (7.2) findet man

$$G_n(az, c) = \sum_{i=0}^{\infty} e_i(c) \frac{(az)^{n-1+i}}{(n-1+i)!} \quad \text{mit} \quad e_i(c) = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial c} d_i(c). \tag{7.7}$$

Sonderfälle sind wieder die ersten beiden Koeffizienten $e_0(c) = e_1(c) = \frac{\sin c}{c}$. Offenbar lassen sich also $F_n(az, c)$ und $G_n(az, c)$ für $az = 0$ durch elementare trigonometrische Funktionen ausdrücken. Für $c = 0$ wiederum erhält man durch Vergleich mit der Potenzreihenentwicklung der modifizierten Besselfunktionen

$$\begin{aligned}
 F_1(az, 0) &= \frac{1}{2} I_0 \left(\sqrt{8az} \right) + \frac{1}{2} \\
 G_2(az, 0) &= \frac{1}{2} I_0 \left(\sqrt{8az} \right) - \frac{1}{2}.
 \end{aligned} \tag{7.8}$$

Entsprechend kann man $F_2(az, 0)$ und $G_3(az, 0)$ durch I_1 ausdrücken. Ausschließlich mit dem Fall $c = 0$ zu tun hat man bei verschwindendem Pumpfeld, $\nu_{21} = 0$ für $\tau \geq 0$. Dann sind alle bei der Rücktransformation von (6.25) auftretenden Greensfunktionen durch modifizierte Besselfunktionen gegeben. Dies ist nicht verwunderlich, führt doch der Fall $\nu_{21} = 0$ auf das in Abschnitt 6.3 diskutierte Problem der einfachen Superfluoreszenz zurück.

7.2 Asymptotische Darstellung der Rücktransformierten durch Sattelpunktsintegration für den Fall $c > \frac{1}{2}\sqrt{az}$

Man geht von der komplexen Umkehrformel der Laplacetransformation

$$\mathcal{L}^{-1}\{f(s)\} = \frac{1}{2\pi i} \int_{s_0 - i\infty}^{s_0 + i\infty} e^{sz} f(s) ds \quad (7.9)$$

aus, die für hinreichend groß gewählte reelle s_0 gilt. Faßt man die Exponenten in (7.1) geeignet zusammen, bekommt man

$$\left. \begin{matrix} F_n(az, c) \\ G_n(az, c) \end{matrix} \right\} = \frac{1}{2\pi i} \int_{s_0 - i\infty}^{s_0 + i\infty} \left\{ g_+(s) e^{h_+(s)} + g_-(s) e^{h_-(s)} \right\} ds. \quad (7.10)$$

Je nachdem, welche von den Funktionen F_n oder G_n dargestellt werden soll, sind die Funktionen $g_{\pm}$ verschieden einzusetzen; $h_{\pm}$ ist jedoch in allen Fällen gleich und durch

$$h_{\pm}(s) = sz + \frac{a}{s} \pm D\tau \quad (7.11)$$

gegeben. Wir behandeln zunächst den Fall $c > \frac{1}{2}\sqrt{az}$, wo die Integrale über die beiden Summanden in Formel (7.10) getrennt ausgewertet werden sollen:

$$\left. \begin{matrix} F_n(az, c) \\ G_n(az, c) \end{matrix} \right\} = \frac{1}{2\pi i} \int_{s_0 - i\infty}^{s_0 + i\infty} g_+(s) e^{h_+(s)} ds + \frac{1}{2\pi i} \int_{s_0 - i\infty}^{s_0 + i\infty} g_-(s) e^{h_-(s)} ds \quad (7.12)$$

Für die in $g_{\pm}$ und $h_{\pm}$ vorkommenden Wurzeln wählt man die Konvention (7.3) mit den in Abb. 12a eingezeichneten Schnitten. Zu den beiden Exponenten $h_{\pm}$ findet man je einen maßgeblichen Sattelpunkt

$$\frac{s_{\pm}}{a} = \sqrt{\frac{4az + 2c^2}{az[az + 2c^2 \pm i\sqrt{az(4c^2 - az)}]}}. \quad (7.13)$$

Die Wurzeln sind hier wiederum mit positivem Realteil zu verstehen. Jeder der beiden Integrationswege in (7.12) mit $s_0 > \frac{a}{c}$ wird nun bei festem R durch zwei parallele Geradenstücke $s = iR + u$ und $s = -iR + u$, $0 \geq u \geq s_0$ und einen um den Koordinatenursprung zentrierten großen Halbkreis mit Radius R in der linken Halbebene geschlossen. Eine Abschätzung zeigt, daß dies für genügend große R am Integralwert nichts ändert. Anschließend zieht man diesen Weg für das linke Integral in (7.12) auf die Kurve $\text{Im}(s) = \text{Im}(s_+)$ zusammen, die durch den Sattelpunkt s_+ geht und für spezielle Werte von a und c in Abb. 12a eingezeichnet ist. Entsprechend erhält man den Weg für das rechte Integral in (7.12) durch Zusammenziehen auf die Kurve $\text{Im}(s) = \text{Im}(s_-)$. Die Sattelpunktsintegration⁸⁴ liefert nun für die Terme niedrigster Ordnung

$$\left. \begin{matrix} F_n(az, c) \\ G_n(az, c) \end{matrix} \right\} = \frac{1}{i} \sqrt{\frac{-1}{2\pi h_+''(s_+)}} g_+(s_+) e^{h_+(s_+)} + \frac{1}{i} \sqrt{\frac{-1}{2\pi h_-''(s_-)}} g_-(s_-) e^{h_-(s_-)}. \quad (7.14)$$

Die beiden großen Wurzeln sind in dieser Formel in Richtung des Integrationsweges durch den jeweiligen Sattelpunkt zu nehmen, im Gegensatz zu der sonst in unserer Arbeit gebrauchten Konvention. Unter der ersten Wurzel kennzeichnet $h_+''(s_+)$ die zweite Ableitung von h_+ nach s im Sattelpunkt s_+ . Analog bedeutet $h_-''(s_-)$ die zweite Ableitung von h_- im Punkt s_- . Es zeigt sich, daß die beiden zu (7.14) beitragenden Terme für $4c^2 > az$ konjugiert komplex zueinander sind. So läßt sich alles durch den ersten Summanden ausdrücken. Nach Einsetzen des analytischen Ausdrucks für h_+'' bekommt man

$$\left. \begin{matrix} F_n(az, c) \\ G_n(az, c) \end{matrix} \right\} = 2 \text{Im} \left[\sqrt{\frac{-\frac{s_+^2}{2\pi}}{2\frac{a}{s_+} - i \frac{(\frac{a}{s_+})^2 [3c^2 - (\frac{a}{s_+})^2]}{[c^2 - (\frac{a}{s_+})^2] \sqrt{c^2 - (\frac{a}{s_+})^2}}} g_+(s_+) e^{h_+(s_+)}} \right], \quad (7.15)$$

wobei die große Wurzel wiederum mit einem Realteil ≥ 0 definiert ist. Zur Auswertung dieser Formel hat man für gegebene Argumente az, c zunächst den Sattelpunkt s_+ mit Hilfe von (7.13) zu berechnen und das Ergebnis hier einzusetzen. Die benutzte Sattelpunktsnäherung liefert zuverlässige Resultate, wenn das Argument az genügend weit oberhalb von Null und c genügend weit oberhalb der Schranke

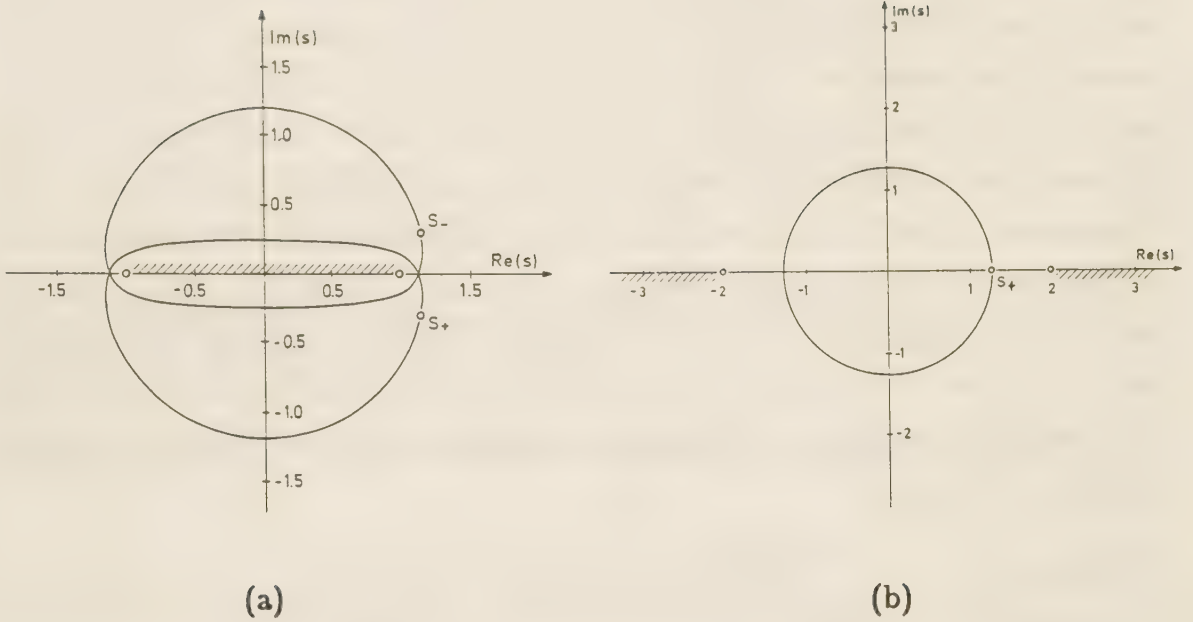


Abb. 12: Schnitte, Verzweigungs- und Sattelpunkte sowie Integrationswege für die in (7.11) definierte Funktionen $h_{\pm}(s)$. (a) Fall $c > \frac{1}{2}\sqrt{az}$, hier für $a = 1$, $z = 1.4$, $c = 1$. Die schraffiert angedeuteten Schnitte sind entsprechend der Konvention (7.3) gewählt. Man erkennt die beiden Integrationswege durch die Sattelpunkte s_+ und s_- . (b) Fall $c < \frac{1}{2}\sqrt{az}$, hier für $a = 1$, $z = 1.4$, $c = 0.5$ dargestellt. Die schraffiert angedeuteten Schnitte sind entsprechend der Konvention (7.4) gewählt. Der maßgebliche Integrationsweg durch den Sattelpunkt s_+ ist eingezeichnet.

$\frac{\sqrt{az}}{2}$ liegt, von der wir oben ausgegangen waren. Eine Vorstellung von der Größenordnung der tatsächlich auftretenden Abweichungen vermittelt die Abbildung 15 im folgenden Abschnitt. Trotz der angewandten Näherung ist die Formel (7.15) noch zu kompliziert, als daß man unmittelbar anschauliche Ergebnisse daran ablesen könnte. Es zeigt sich jedoch, daß die charakteristischen Eigenschaften der interessierenden Funktionen bereits recht klar herauskommen, wenn man die verschiedenen Ausdrücke in dieser Formel nach dem Verhältnis $p = \frac{\sqrt{az}}{2c}$ entwickelt. Wir hatten ja eben bereits gesagt, daß Sattelpunktsnäherung für $p \rightarrow 1$ unzuverlässig wird und nehmen nun $p \ll 1$ an. Man erhält dann beispielsweise für $F_1(az, c)$

$$F_1(az, c) = \text{Re} \left[\frac{1}{\sqrt{4\pi\sqrt{az}}} \left\{ \left(1 - \frac{13}{16} \frac{az}{2c} + \dots \right) + i \frac{\sqrt{az}}{2c} \left(1 - \frac{35}{16} \frac{az}{2c} + \dots \right) \right\} e^{h_+(s_+)} \right]$$

mit

$$h_+(s_+) = 2\sqrt{az} \left[1 + \frac{1}{8} \frac{az}{2c} - \frac{5}{128} \left(\frac{az}{2c} \right)^2 + \dots \right] + ic \left[1 - \frac{1}{2} \frac{az}{2c} + \frac{1}{8} \left(\frac{az}{2c} \right)^2 \dots \right] \quad (7.16)$$

Für $c \rightarrow \infty$ bei festgehaltenem Argument az vollführt $F_1(az, c)$ offenbar eine Kosinusschwingung mit der Amplitude

$$\frac{1}{\sqrt{4\pi\sqrt{az}}} e^{2\sqrt{az}}.$$

Für kleinere Werte von c treten Abweichungen von der Kosinusgestalt auf, die für genügend große az praktisch ausschließlich durch das Verhalten des Exponenten $h_+(s_+)$ bestimmt werden. Sie führen in erster Ordnung zu einer Amplitudenvergrößerung und zu einer Verschiebung der Schwingung, so daß eine bestimmte Schwingungsphase erst bei um $\frac{az}{2c}$ höheren c -Werten erreicht wird. All dies ist auch in der exakten Lösung wiederzufinden, wie sie in Abb. 13 dargestellt ist. Daß das Aussehen der Lösung für genügend große az fast ausschließlich durch das Verhalten des Exponenten $h_+(s_+)$ und kaum durch die Variationen von $g_+(s_+)$ bestimmt wird, bedeutet für all die Funktionen F_1, F_2, G_1, G_2, G_3 ein recht ähnliches asymptotisches Verhalten. Nähert sich das Argument c von oben der Schranke $\frac{1}{2}\sqrt{az}$, laufen die Sattelpunkte s_+ und s_- aufeinander zu und vereinigen sich für $c = \frac{1}{2}\sqrt{az}$ auf der reellen Achse. Für $c < \frac{1}{2}\sqrt{az}$ gibt es dann nur noch für h_+ einen Sattelpunkt, der zwischen dem Punkt Null und $\frac{a}{c}$ liegt und über den man den Integrationsweg führen kann, nicht aber mehr für h_- . Die sich daraus ergebenden Modifikationen werden im nächsten Abschnitt erörtert.

7.3 Asymptotische Darstellung der Rücktransformierten durch Sattelpunktsintegration für den Fall $c < \frac{1}{2}\sqrt{az}$

Für $c < \frac{1}{2}\sqrt{az}$ nutzt man aus, daß die Kombination $g_+(s)e^{h_+(s)} + g_-(s)e^{h_-(s)}$ als Ganzes überall in der komplexen Ebene mit Ausnahme des Punktes $s = 0$ holomorph ist, um den für die komplexe Umkehrformel (7.10) gebrauchten Integrationsweg bis in das Innere des Kreises $|s| < \frac{a}{c}$ zusammenzuziehen. Erst nach diesem Zusammenziehen spaltet man den zu integrierenden Ausdruck unter Benutzung der Schnittkonvention (7.4) in seine Summanden auf und wertet die Integrale über beide

Summanden getrennt aus. Das Integral über den ersten Term $g_+(s)e^{h_+(s)}$ führt man dabei in gewohnter Manier über den Sattelpunkt

$$\frac{s_+}{a} = \sqrt{\frac{4az + 2c^2}{az[az + 2c^2 + \sqrt{az(az - 4c^2)}]}}$$

bei konstantem Imaginärteil des Exponenten $h_+(s)$. Der resultierende Weg ist in Abb. 12b eingezeichnet. Man errechnet als Beitrag zu $F_n(az, c)$ bzw. $G_n(az, c)$ den Ausdruck

$$\left. \begin{matrix} F_n(az, c) \\ G_n(az, c) \end{matrix} \right\} = \sqrt{\frac{\frac{s_+^2}{2\pi}}{2\frac{a}{s_+} + \frac{\left(\frac{a}{s_+}\right)^2 \left[\left(\frac{a}{s_+}\right)^2 - 3c^2\right]}{\left[\left(\frac{a}{s_+}\right)^2 - c^2\right] \sqrt{\left(\frac{a}{s_+}\right)^2 - c^2}}} g_+(s_+) e^{h_+(s_+)}. \quad (7.17)$$

Zu diesem Ausdruck hätte man im Prinzip noch den Beitrag

$$\frac{1}{2\pi i} \int g_-(s) e^{h_-(s)} ds$$

zu addieren, wobei der Integrationsweg den Nullpunkt umschließt. Da jedoch $h_-(s)$ bei der hier gewählten Lage der Schritte keine Singularität im Nullpunkt besitzt, kann der Integrand $g_-(s)e^{h_-(s)}$ dort nur einen Pol von höchstens zweiter Ordnung haben. Den Integralwert kann man leicht mit Hilfe der üblichen Residuenrechnung erhalten, man sieht jedoch sofort, daß er höchstens linear mit az anwachsen kann. Für die hier ins Auge gefaßten großen Argumente az vernachlässigen wir deshalb seinen Beitrag gegenüber dem in Formel (7.17), der nach der folgenden Betrachtung im wesentlichen exponentiell mit $\sqrt{8az}$ anwächst.

Die Eigenschaften der Greensfunktionen für $c < \frac{1}{2}\sqrt{az}$ werden besonders deutlich, wenn man das zur Definition dieses Falles benutzte Kriterium dahingehend verschärft, daß man das Verhältnis $q = \frac{c}{\sqrt{az}}$ als klein annimmt und den Ausdruck (7.17) danach entwickelt. In analoger Weise wie in Abschnitt 7.2 erhält man nun beispielsweise für F_1 die Entwicklung

$$F_1(az, c) = \frac{1}{4\sqrt{\pi}\sqrt{2az}} \left[1 + \frac{1}{8} \frac{c^2}{az} \dots \right] e^{h_+(s_+)}$$

mit

$$h_+(s_+) = \sqrt{8az} \left[1 - \frac{1}{2} \frac{c^2}{az} - \frac{5}{32} \left(\frac{c^2}{az} \right)^2 - \dots \right]. \quad (7.18)$$

Für $c = 0$ erhält man erwartungsgemäß das von den modifizierten Besselfunktionen im Ausdruck (7.8) bekannte asymptotische Verhalten. An die Stelle der für $c \gg \frac{1}{2}\sqrt{az}$ im vorangegangenen Abschnitt erörterten Oszillationen tritt so für $c \ll \frac{1}{2}\sqrt{az}$ ein exponentieller Anstieg mit $\sqrt{8az}$. Das Verhalten der Funktionen F_1 , F_2 , G_1 , G_2 , G_3 wird für größere Argumente az und beliebige c wiederum weitgehend durch das Verhalten des Exponenten $h_+(s_+)$ bestimmt, der für all diese Funktionen derselbe ist. Offenbar fallen die Funktionswerte, bei konstantem az betrachtet, mit wachsendem c^2 ab.

7.4 Numerische Laplace-Rücktransformation

Die in den vorangehenden Abschnitten zusammengestellten Kenntnisse aus analytischen Näherungslösungen erlauben es nun, die Parameter numerischer Rücktransmutationsverfahren geeignet zu wählen und passende Transformationen zu finden, um die Rechnungen effizient zu gestalten. Außerdem ermöglichen sie eine Kontrolle der Resultate. Bei der eigentlichen Rücktransformation wurde ein von Crumb⁸⁵ entwickeltes Verfahren benutzt. Einige Ergebnisse sind in Abb. 13 und 14 dargestellt. Man erkennt in jedem Fall den stetigen Übergang zwischen den in den beiden vorangehenden Abschnitten getrennt behandelten Bereichen $c > \frac{1}{2}\sqrt{az}$ und $c < \frac{1}{2}\sqrt{az}$. In Abb. 15 wird ein Vergleich zwischen den schon in Abb. 13 dargestellten numerischen Resultaten für F_1 (durchgezogene Höhenlinien) und denen der Sattelpunktsnäherung (gestrichelte Höhenlinien) gezogen. Der Sattelpunktsnäherung liegen dabei die Formeln (7.15) bzw. (7.17) zugrunde. Man sieht, daß die Übereinstimmung recht gut ist, außer bei kleinen Werten von az und bei Werten von c in der Nähe von $\frac{1}{2}\sqrt{az}$.

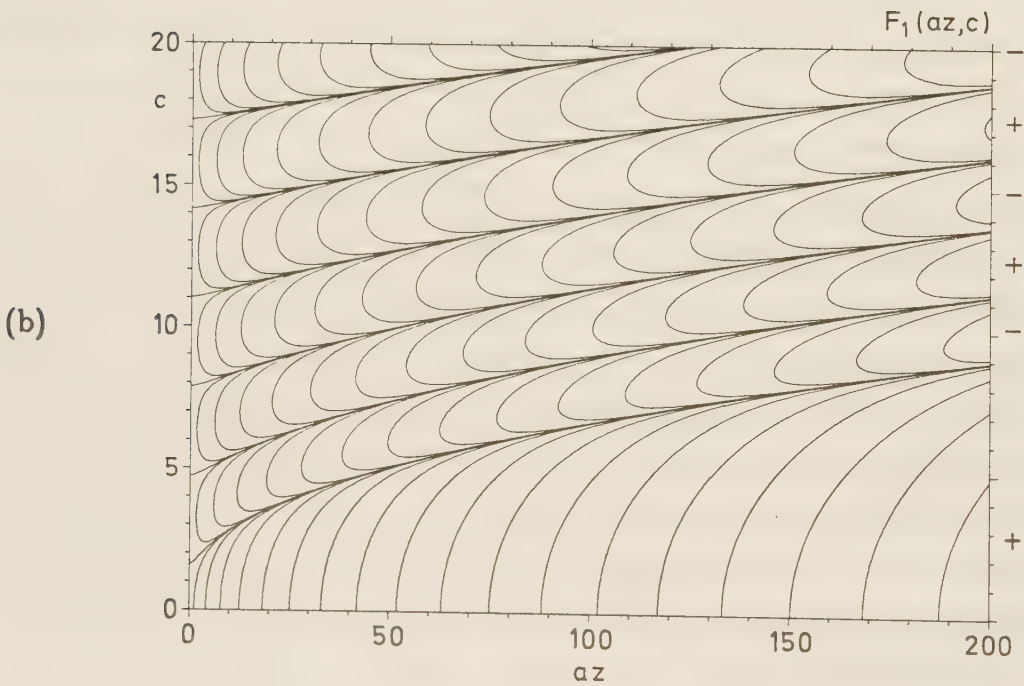
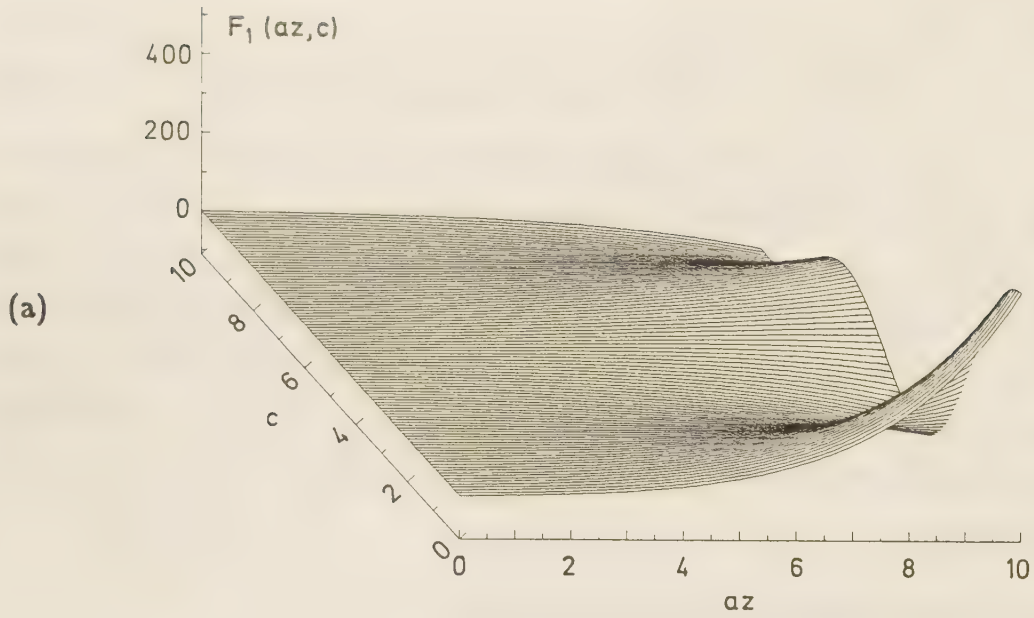


Abb. 13: Durch numerische Laplace-Rücktransformation erhaltene Darstellung der Funktion $F_1(az, c)$. (a) Perspektivische Darstellung im Bereich $az \leq 10$. (b) Niveauliniendiagramm für den größeren Bereich bis $az \leq 200$. Die Höhenlinien entsprechen dabei Funktionswerten $F_1(az, c) = \sinh(2n)$, $n = -15, \dots, -1, 0, 1, \dots, +18$. Die Linien für $F_1(az, c) = 0$ entsprechend dem Höhenlinienindex $n = 0$ erkennt man daran, daß sie sich bis zur c -Achse fortsetzen. An ihnen wechselt das Vorzeichen, das rechts im Plot angedeutet ist.

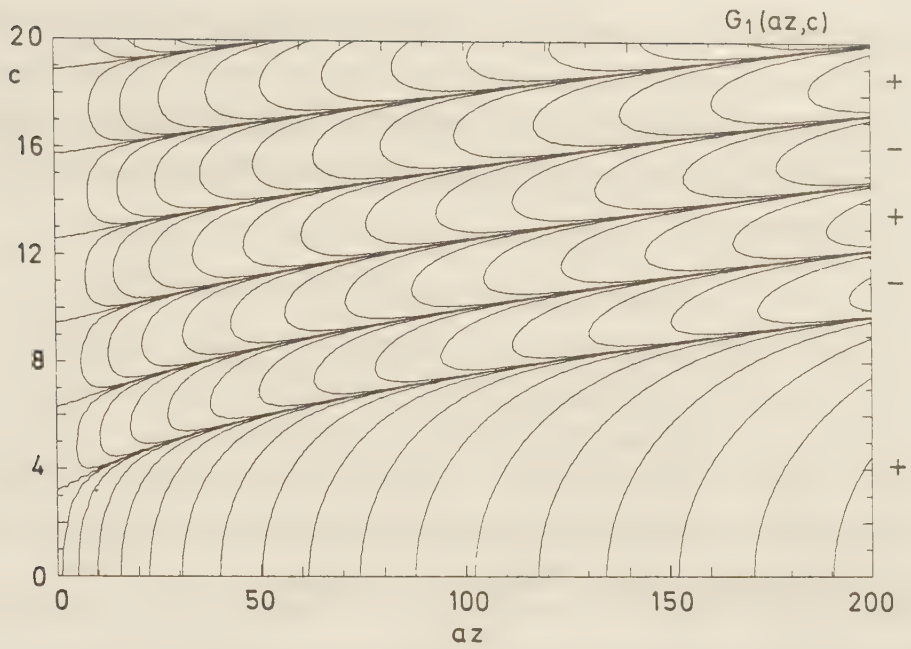


Abb. 14: Durch numerische Laplace-Rücktransformation erhaltene Werte der Funktion $G_1(az, c)$, in gleicher Weise dargestellt wie die Funktion $F_1(az, c)$ in Abb. 13b.

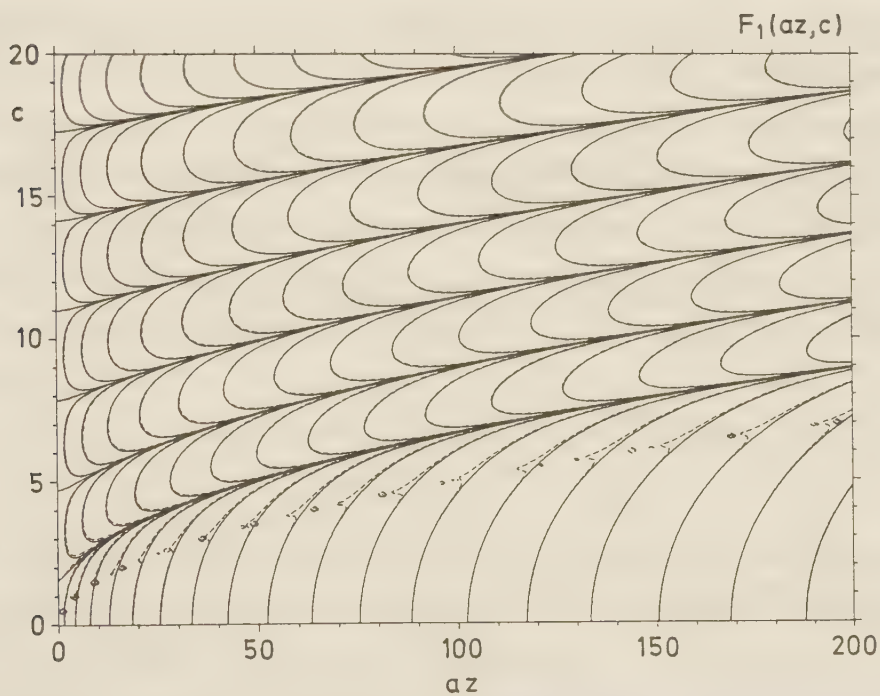


Abb. 15: Vergleich der durch numerische Laplace-Rücktransformation erhaltenen Darstellung der Funktion F_1 (durchgezogene Höhenlinien) mit den Ergebnissen der Sattelpunktsnäherung (gestrichelte Höhenlinien). Die Darstellungsweise entspricht der aus Abb. 13b.

8. Berechnung von Intensität und Spektrum für $\Delta = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle = 0$

Im vorangehenden Kapitel wurde gezeigt, wie man für die zunächst formal definierten Funktionen F_1, F_2, G_1, G_2, G_3 brauchbare Werte erhalten kann. Bildet man nun die Kombinationen

$$\begin{aligned} H_1(az, c) &= c G_1(az, c) \\ H_2(az, c) &= G_2(az, c) + F_1(az, c) \\ H_3(az, c) &= \frac{1}{c} G_3(az, c) + \frac{1}{c} F_2(az, c), \end{aligned} \quad (8.1)$$

kann man die Laplace-Rücktransformierte des Feldoperators (6.25) unter Benutzung des Laplace-Faltungstheorems in der Form schreiben

$$\begin{aligned} \hat{\nu}_{23}(z, \tau) &= \\ &\hat{\nu}_{23}(0, \tau) + 2|\nu_{21}| \int_0^\tau d\tau' e^{-\gamma_{ph}(\tau-\tau')} H_3\left(\frac{\kappa\omega}{2}(\tau-\tau')z, |\nu_{21}|(\tau-\tau')\right) \hat{\nu}_{23}(0, \tau') \\ &- \kappa \frac{\nu_{21}}{|\nu_{21}|} \int_0^\tau d\tau' \int_0^z dz' e^{-\gamma_{ph}(\tau-\tau')} H_1\left(\frac{\kappa\omega}{2}(\tau-\tau')(z-z'), |\nu_{21}|(\tau-\tau')\right) \hat{\Gamma}_{31}(z', \tau') \\ &- i\kappa \int_0^\tau d\tau' \int_0^z dz' e^{-\gamma_{ph}(\tau-\tau')} H_2\left(\frac{\kappa\omega}{2}(\tau-\tau')(z-z'), |\nu_{21}|(\tau-\tau')\right) \hat{\Gamma}_{32}(z', \tau') \\ &- \kappa \frac{\nu_{21}}{|\nu_{21}|} e^{-\gamma_{ph}\tau} \int_0^z dz' H_1\left(\frac{\kappa\omega}{2}\tau(z-z'), |\nu_{21}|\tau\right) \hat{\sigma}_{31}(z', 0) \\ &- i\kappa e^{-\gamma_{ph}\tau} \int_0^z dz' H_2\left(\frac{\kappa\omega}{2}\tau(z-z'), |\nu_{21}|\tau\right) \hat{\sigma}_{32}(z', 0). \end{aligned} \quad (8.2)$$

Die hier gegebene Darstellung des Stokesfeldoperators $\hat{\nu}_{23}(z, \tau)$ durch seine Werte am Anfang des Verstärkers bei $z = 0$, durch die Anfangswerte der Polarisationsoperatoren $\hat{\sigma}_{31}$ und $\hat{\sigma}_{32}$ bei $\tau = 0$ und schließlich durch die Langevinkräfte $\hat{\Gamma}_{31}$ und $\hat{\Gamma}_{32}$ im ganzen Innern des Verstärkungsbereichs bei allen möglichen Werten von z und τ

bildet die Basis für die weiteren Rechnungen. Die Frage nach Intensität und Spektrum des Stokesfeldes erfordert die Bestimmung von Erwartungswerten der Form $\langle \hat{\nu}_{23}^\dagger(z, \tau_1) \hat{\nu}_{23}(z, \tau_2) \rangle$. Sie lassen sich mit Gleichung (8.2) auf Korrelationsfunktionen

- a) des eventuell bei $z = 0$ eingestrahnten Signals
- b) der Anfangspolarisations-Operatoren
- c) der Langevinkräfte

zurückführen. Eine Kreuzkorrelation zwischen den genannten drei Typen von Operatoren braucht im allgemeinen nicht in Betracht gezogen zu werden.

8.1 Entwicklung der Stokesintensität nach dem Einschalten der Verstärkung

Als erstes soll nun die Intensität der auftretenden Stokesstrahlung berechnet werden, d.h. die Energie pro Zeit- und Flächeneinheit, die den Verstärker am Punkt z in Achsrichtung passiert. Wir gehen zunächst davon aus, daß am Eingang des Verstärkers kein Stokesfeld vorhanden ist, behandeln also den Fall ohne externe Einkopplung. Es ist dann $\langle \hat{\nu}_{23}^\dagger(0, \tau_1) \hat{\nu}_{23}(0, \tau_2) \rangle = 0$. Um die Korrelationsfunktion des verstärkten Feldes zu berechnen, braucht man somit nur die Korrelationsfunktionen der Anfangspolarisation (6.12) und der Langevinkräfte (6.9). Denkt man an Situationen wie die früher in Abschnitt 3.3 und 3.4 diskutierten Natriumexperimente, erscheint es sinnvoll, im folgenden die longitudinalen Relaxationszeiten w_{21} , w_{23} und w_{31} zunächst einmal gegenüber der Phasenrelaxationsrate γ_{ph} zu vernachlässigen. Entsprechend den Schlußbemerkungen von Abschnitt 3.4 soll ferner im weiteren Verlauf der Rechnung näherungsweise $\langle \hat{\sigma}_{11} \rangle = \langle \hat{\sigma}_{22} \rangle$ gesetzt werden. Man erhält $\langle \hat{\nu}_{23}^\dagger(z, \tau_1) \hat{\nu}_{23}(z, \tau_2) \rangle =$

$$\begin{aligned} \frac{|\kappa|^2}{NA} \sum_{i=1}^2 \langle \hat{\sigma}_{ii} \rangle \int_0^z dz' \left\{ e^{-\gamma_{ph}\tau_1} H_i \left(\frac{\kappa w}{2} (z - z') \tau_1, |\nu_{21}| \tau_1 \right) \right. \\ e^{-\gamma_{ph}\tau_2} H_i \left(\frac{\kappa w}{2} (z - z') \tau_2, |\nu_{21}| \tau_2 \right) \\ + 2\gamma_{ph} \int_0^{\min(\tau_1, \tau_2)} d\tau' e^{-\gamma_{ph}(\tau_1 - \tau')} H_i \left(\frac{\kappa w}{2} (z - z') (\tau_1 - \tau'), |\nu_{21}| (\tau_1 - \tau') \right) \\ \left. e^{-\gamma_{ph}(\tau_2 - \tau')} H_i \left(\frac{\kappa w}{2} (z - z') (\tau_2 - \tau'), |\nu_{21}| (\tau_2 - \tau') \right) \right\}. \end{aligned} \quad (8.3)$$

Für die Berechnung des Intensitäts-Erwartungswertes

$$\langle \hat{I}(z, \tau) \rangle = 2\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \langle \hat{\mathcal{E}}_s^{(-)}(z, \tau) \hat{\mathcal{E}}_s^{(+)}(z, \tau) \rangle = 2\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{\hbar}{\mu_{23}} \right)^2 \langle \hat{\nu}_{23}^\dagger(z, \tau) \hat{\nu}_{23}(z, \tau) \rangle \quad (8.4)$$

hat man die Stokesfeld-Autokorrelationsfunktion für $\tau_1 = \tau_2 = \tau$ auszuwerten. Mit der Definition (6.16) für κ bekommt man

$$\begin{aligned} \langle \hat{I}(z, \tau) \rangle = & \frac{\hbar \nu_s}{A} \gamma_{ph} \frac{\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle}{w} \left\{ \frac{2}{\gamma_{ph}} e^{-2\gamma_{ph}\tau} \int_0^{\frac{\kappa w z}{2}} d\lambda \left[H_1^2(\lambda\tau, |\nu_{21}|\tau) + H_2^2(\lambda\tau, |\nu_{21}|\tau) \right] \right. \\ & \left. + 4 \int_0^\tau d\tau' e^{-2\gamma_{ph}\tau'} \int_0^{\frac{\kappa w z}{2}} d\lambda \left[H_1^2(\lambda\tau', |\nu_{21}|\tau') + H_2^2(\lambda\tau', |\nu_{21}|\tau') \right] \right\}. \end{aligned} \quad (8.5)$$

Das erste Integral beschreibt den mit der Zeit abklingenden Einfluß der Anfangsunschärfe der atomaren Operatoren $\hat{\sigma}_{31}$ und $\hat{\sigma}_{32}$, das folgende Doppelintegral den für größere Zeiten $\gamma_{ph}\tau \gg 1$ dominierenden Einfluß der Langevinkräfte $\hat{\Gamma}_{31}$ und $\hat{\Gamma}_{32}$. Die Größe $\hbar\nu_s$ auf der rechten Seite in (8.5) stellt dabei die Energie eines Stokesphotons dar. Die Zahl der Stokesphotonen pro Querschnittsfläche des Verstärkers, die pro Phasenrelaxationszeit $1/\gamma_{ph}$ in den der Fresnelzahl 1 entsprechenden Raumwinkel emittiert werden, ist also durch das Produkt der Größe $\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle/w$ (einer dimensionslosen Zahl immer ≥ 1) und der geschweiften Klammer in (8.5) gegeben. Diese geschweifte Klammer, gleichfalls eine dimensionslose Größe, ist in Abb. 16 und 17 als Ergebnis numerischer Rechnungen dargestellt. Unabhängige Variablen sind dabei

- $\gamma_{ph}\tau$, die Zeit nach dem Einschalten des Verstärkungsprozesses gemessen in Einheiten der Phasenrelaxationszeit des Mediums,
- die dimensionslose Kenngröße $\zeta = \frac{\kappa w z}{2\gamma_{ph}}$ für die effektive Länge des verstärkenden Mediums,
- das Verhältnis $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$, das den Einfluß des dynamischen Stark-Effekts charakterisiert.

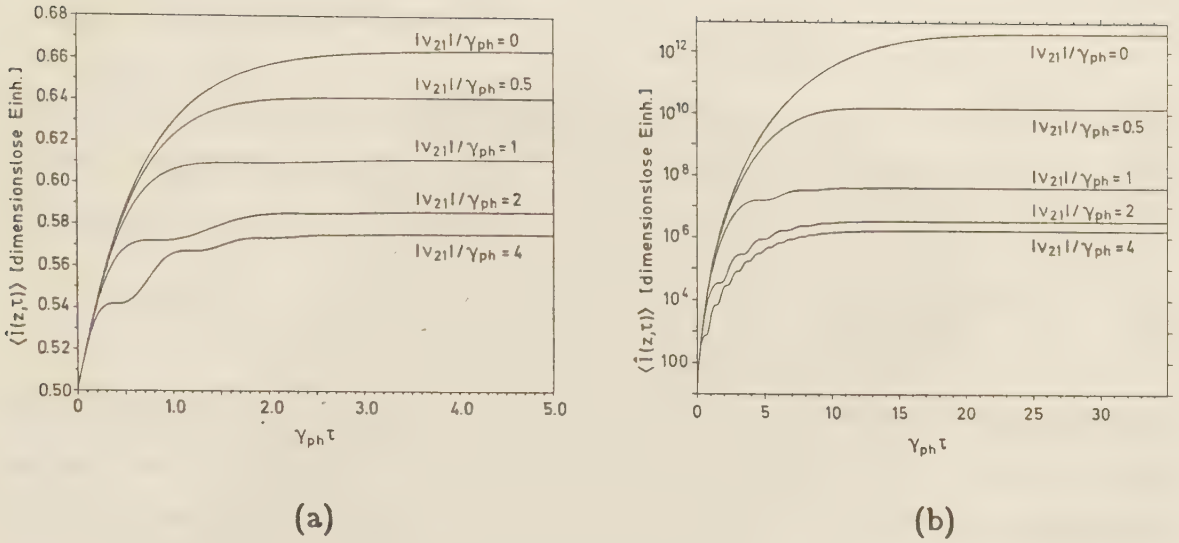


Abb. 16: Anstieg der Stokesintensität nach dem Einschalten der Verstärkung. Dargestellt ist der dimensionslose Ausdruck in der geschweiften Klammer in (8.5) bzw. (8.8) für verschiedene Werte des Kurvenparameters $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$. Die effektive Verstärkerlänge ζ ist im linken Diagramm (a) zu $\zeta = 0.5$, im rechten Diagramm (b) zu $\zeta = 8$ gewählt. Je nach Anregungsbedingungen kann auch der semiklassisch berechenbare Vorfaktor vor der dargestellten geschweiften Klammer von $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ abhängen, was hier nicht vorgeführt wird.

Abb. 16 zeigt den zeitlichen Anstieg der Intensität für die fest gewählten Werte $\zeta = 0.5$ und 8 ; das Verhältnis $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ dient als Kurvenparameter. Im folgenden soll nur der Fall $\zeta = 8$ diskutiert werden. Dieser Wert für ζ ist hoch genug, um die Unterschiede in den Größenordnungen der auftretenden Intensitäten deutlicher hervortreten zu lassen als bei niedrigerer Verstärkung. Andererseits ist er noch so niedrig, daß die am Verstärkerausgang erreichten Intensitäten in geeignet realisierten experimentellen Anordnungen noch keine merklichen Sättigungserscheinungen hervorrufen. Ein Blick auf Abb. 16 zeigt, daß die Intensität für $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 0$ bis kurz nach dem Zeitpunkt $\gamma_{ph}\tau = 2\zeta$ monoton ansteigt und dann einen sehr hohen stationären Wert erreicht. Für größere $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ wird der Anstieg schon sehr bald nach seinem Beginn durch Oszillationen mit der Pump-Rabifrequenz $2|\nu_{21}|$ gebremst. Und ist kurz nach dem Zeitpunkt $\gamma_{ph}\tau = \zeta$ bereits zu Ende. Mit der Folge, daß der Intensitätsanstieg bis zum Erreichen des stationären Wertes nur etwa halb so viele Zehnerpotenzen durchmißt wie der entsprechende Anstieg für $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 0$.

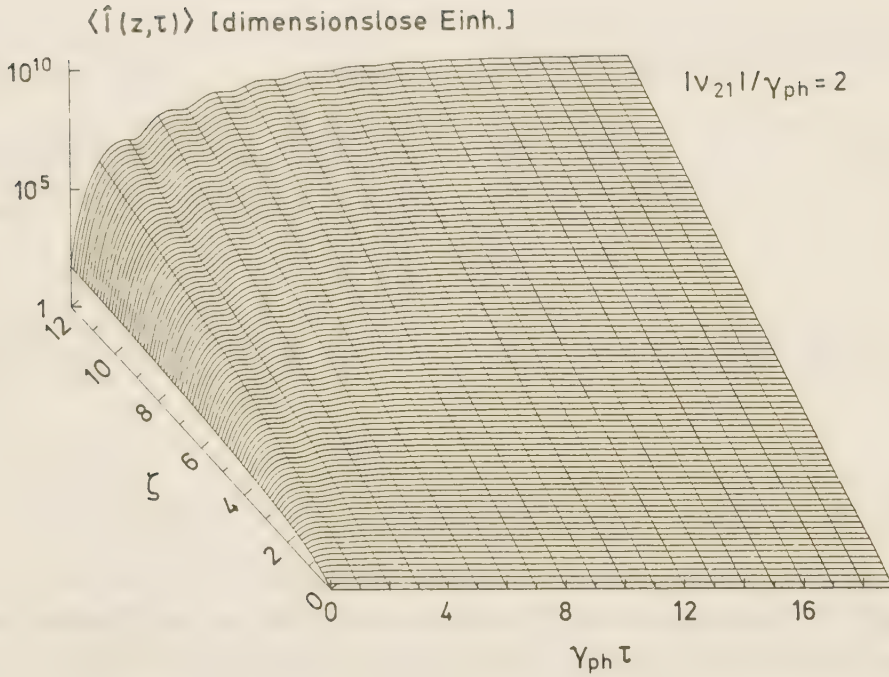


Abb. 17: Anstieg der Stokesintensität nach dem Einschalten der Verstärkung. Wie in Abb. 16 ist der dimensionslose Ausdruck in der geschweiften Klammer in (8.5) bzw. (8.8) wiedergegeben, diesmal jedoch in perspektivischer Darstellung für beliebige effektive Verstärkerlängen ζ , bei festem Verhältnis $\nu_{21}/\gamma_{ph} = 2$.

Zur Erklärung des geschilderten Verhaltens hat man vor allem das hier hauptsächlich beteiligte Doppelintegral in der zweiten Zeile von Formel (8.5) zu betrachten. Der Hauptbeitrag zu diesem Doppelintegral rührt von Greensfunktionen im Bereich der asymptotischen Näherung her. Und zwar trägt hier bei kleinen Werten von $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ vor allem der Bereich $c < \frac{1}{2}\sqrt{az}$ bei, bei größeren Werten $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ vor allem der Bereich $c > \frac{1}{2}\sqrt{az}$. Die in Abschnitt 7.2 für den letztgenannten Bereich gefundenen Schwingungen der Greensfunktionen können im Prinzip auch die in Abb. 16 und 17 für große $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ erkennbaren Oszillationen des Intensitätsanstiegs erklären; dieser Effekt soll jedoch im folgenden vernachlässigt werden. Benutzt man die asymptotischen Abschätzungen (7.16) und (7.18) und beschränkt sich auf das erste Glied in der Entwicklung des Realteils des Exponenten, erhält man für den Ausdruck unter dem Doppelintegral in (8.5) die grobe Näherung

$$e^{-2\gamma_{ph}\tau'} \left[H_1^2(\lambda\tau', |\nu_{21}|\tau') + H_2^2(\lambda\tau', |\nu_{21}|\tau') \right] \sim e^{-2\gamma_{ph}\tau' + 4\sqrt{\epsilon\lambda\tau'}}$$

mit

$$\epsilon = \begin{cases} 2 & \text{für } |\nu_{21}|/\gamma_{ph} \ll 1; \\ 1 & \text{für } |\nu_{21}|/\gamma_{ph} \gg 1. \end{cases}$$

Das Maximum des Exponenten $-2\gamma_{ph}\tau' + 4\sqrt{\epsilon\lambda\tau'}$ bezüglich λ liegt offenbar an der oberen Integrationsgrenze $\lambda = \frac{\kappa\omega z}{2}$. Entwickelt man den Exponenten für diesen Wert von λ um sein Maximum bezüglich τ' , erhält man

$$e^{-2\gamma_{ph}\tau'} \left[H_1^2(\lambda\tau', |\nu_{21}|\tau') + H_2^2(\lambda\tau', |\nu_{21}|\tau') \right] \sim e^{2\epsilon\zeta - \frac{1}{2\epsilon\zeta}(\gamma_{ph}\tau' - \epsilon\zeta)^2}. \quad (8.6)$$

Das Doppelintegral (8.5) wird nun seinen stationären Wert genau dann erreichen, sobald das τ' -Integral das Maximum von (8.6) bezüglich τ' gerade vollständig überdeckt, sobald also $\gamma_{ph}\tau$ ein Stück größer als $\epsilon\zeta$ ist. Formel (8.6) macht deutlich, weshalb die Intensität für $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 0$ etwa doppelt so lange ansteigt wie für $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} \gg 1$ und dabei doppelt so viele Zehnerpotenzen überwindet. Eine mehr physikalische Erklärung für die höheren stationären Intensitätswerte findet sich in Abschnitt 8.3. Neben den bisher kommentierten beiden Plots soll hier noch die in Abb. 17 gezeigte perspektivische Darstellung des Intensitätsanstiegs in Abhängigkeit von ζ bei festem Wert $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 2$ angesprochen werden. Wie man sieht, wächst die Intensität bezüglich ζ nahezu exponentiell an, was in der hier gewählten logarithmischen Darstellung gerade Linien gibt.

Zu dem bisher diskutierten und in Formel (8.5) angegebenen Ausdruck für die Intensität am Punkt z treten zusätzliche Terme hinzu, wenn man bei $z = 0$ ein elektromagnetisches Feld in der Nähe der Stokesfrequenz in das verstärkende Medium einstrahlt. Wir betrachten im folgenden die Einstrahlung eines breitbandigen chaotischen Feldes ohne zeitliche Kohärenz

$$2\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{\hbar}{\mu_{23}} \right)^2 \langle \hat{\nu}_{23}^\dagger(0, \tau_1) \hat{\nu}_{23}(0, \tau_2) \rangle = G_0 \delta(\tau_1 - \tau_2). \quad (8.7)$$

G_0 charakterisiert die spektrale Dichte dieses Feldes. Aufgrund der Einstrahlung liefert der Ausdruck (8.2) die folgenden Zusatzbeiträge zur Intensität (8.5)

$$2\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{\hbar}{\mu_{23}} \right)^2 \langle \hat{\nu}_{23}^\dagger(0, \tau) \hat{\nu}_{23}(0, \tau) \rangle + G_0 \gamma_{ph} \left\{ \frac{\kappa\omega z}{\gamma_{ph}} + 4 \frac{|\nu_{21}|^2}{\gamma_{ph}} \int_0^\tau d\tau' e^{-2\gamma_{ph}\tau'} H_3^2\left(\frac{\kappa\omega z}{2} \tau', |\nu_{21}|\tau'\right) \right\}. \quad (8.8)$$

Der erste Zusatzbeitrag repräsentiert einfach die eingestrahlte Intensität. Wegen der oben angenommenen unendlichen Bandbreite hat sie keinen endlichen Wert. Die zweite Zeile in (8.8) repräsentiert die aufgrund der Einstrahlung im verstärkenden Medium zusätzlich freigesetzte Intensität. Der erste Beitrag in der geschweiften Klammer ist dabei durch Auswertung des Grenzwertes $\lim_{\tau' \rightarrow 0} H_3\left(\frac{\kappa w z}{2}\tau', |\nu_{21}|\tau'\right)$ mit Hilfe der Reihenentwicklungen (7.6) und (7.7) erhalten worden. Unter Zuhilfenahme der Beziehungen (7.2) läßt sich zeigen, daß die hier auftretende geschweifte Klammer mit der in Formel (8.5) auftretenden übereinstimmt.

8.2 Definition stationärer und zeitabhängiger Leistungsspektren

Solange man ein elektromagnetisches Feld als stationären Zufallsprozeß auffassen kann, bereitet die eindeutige Definition dessen, was unter seiner spektralen Leistungsdichte zu verstehen sei, keine besonderen Schwierigkeiten.^{86,87} In der vorliegenden Arbeit hat man es mit Feldern der Form (5.3) zu tun, die nur in der Umgebung einzelner Frequenzen ν_l merkliche Beiträge liefern. Benutzt man weiterhin die einer Feldausbreitung entlang der in $+z$ -Achse entsprechende retardierte Zeit τ , schreibt man das Feld in der Form

$$\hat{E}(z, \tau) = \sum_{l=1}^p \left(\hat{\mathcal{E}}_l^{(+)}(z, \tau) e^{-i\nu_l \tau} + \hat{\mathcal{E}}_l^{(-)}(z, \tau) e^{i\nu_l \tau} \right) \quad (8.9)$$

mit langsam variierenden Amplituden $\hat{\mathcal{E}}_l^{(+)}(z, \tau)$ und $\hat{\mathcal{E}}_l^{(-)}(z, \tau)$. In der Umgebung der Frequenz ν_l soll dann unter der spektralen Leistungsdichte $G(z, \omega)$ diejenige Energie pro Zeit-, Flächen- und Frequenzeinheit verstanden werden, die den Punkt z in Achsrichtung passiert. Die als Argument der spektralen Leistungsdichte auftretende Größe ω mit $|\omega| \ll \nu_l$ kennzeichnet dabei die Abweichung von der Bezugsfrequenz ν_l . Das Integral $\frac{1}{2\pi} \int G(z, \omega) d\omega$ liefert die im vorangegangenen Abschnitt definierte Intensität. Für die spektrale Leistungsdichte in der Umgebung der Frequenz ν_l findet man zwei entsprechend dem Wiener-Khintchine-Theorem⁸⁸ äquivalente Darstellungen. Die eine lautet

$$G(z, \omega) = 2\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{\langle \hat{e}_T^\dagger(z, \omega) \hat{e}_T(z, \omega) \rangle}{T}, \quad (8.10)$$

wobei $\hat{e}_T(z, \omega)$ die Fouriertransformierte der für Zeiten $\tau < 0$ und $\tau > T$ abgeschnittenen Feldamplitude $\hat{\mathcal{E}}_l^{(+)}(z, \tau)$ ist:

$$\hat{e}_T(z, \omega) = \int_0^T d\tau e^{i\omega\tau} \mathcal{E}_l^{(+)}(z, \tau). \quad (8.11)$$

Die andere definiert die spektrale Leistungsdichte als Fouriertransformierte der Autokorrelationsfunktion

$$G(z, \omega) = 2\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \int_{-\infty}^{\infty} d\tau' e^{i\omega\tau'} \langle \hat{\mathcal{E}}_l^{(-)}(z, \tau) \hat{\mathcal{E}}_l^{(+)}(z, \tau + \tau') \rangle. \quad (8.12)$$

Bei nicht stationären Zufallsprozessen ist die Zuordnung eines Leistungsspektrums schwieriger. Eberly und Wódkiewicz⁸⁹ referieren Lösungsansätze verschiedener Autoren und schlagen selbst eine neue Definition vor. Sie gehen dabei von einer idealisierten Meßanordnung aus und stellen sich vor, daß man das zu analysierende Feld auf ein Fabry-Perot-Filter mit einem Transmissionsmaximum bei der Frequenz ω mit einer spektralen Durchlaßbandbreite Γ fallen läßt. Die zur Zeit τ hinter dem Filter anzutreffende Intensität nehmen sie dann als Maß für die spektrale Dichte $G(\omega, \tau, \Gamma)$, die sie dem zu analysierenden Feld für den Augenblick τ zuschreiben. Wählt man die Normierung entsprechend der Relation

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\tau \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} G(\omega, \tau, \Gamma) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle \hat{I}(z, \tau) \rangle$$

mit der Intensität (8.4), erhält man für die spektrale Leistungsdichte eines beliebigen zeitabhängigen Feldes der Form (8.9)

$$G(z, \omega, \tau, \Gamma) = 4\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \Gamma \int_{-\infty}^{\tau} d\tau_1 \int_{-\infty}^{\tau} d\tau_2 e^{(-\Gamma+i\omega)(\tau-\tau_1)} e^{(-\Gamma-i\omega)(\tau-\tau_2)} \langle \hat{\mathcal{E}}_l^{(-)}(z, \tau_1) \hat{\mathcal{E}}_l^{(+)}(z, \tau_2) \rangle. \quad (8.13)$$

Setzt man hier wiederum einen stationären Zufallsprozeß ein, erhält man für $G(\omega, \tau, \Gamma)$ die Faltung des Spektrums (8.12) mit einer der Filtertransmission entsprechenden Lorentzkurve der Breite Γ . Für $\Gamma \rightarrow 0$ geht dann $G(\omega, \tau, \Gamma)$ in den

Ausdruck (8.12) über. Bei nicht stationären Prozessen darf man Γ nicht zu klein wählen, da man sonst nur die ferne Vergangenheit des Feldes erfaßt und vom aktuellen Zustand nichts mehr mitbekommt. Der Vorteil der von Eberly und Wódkiewicz definierten spektralen Leistungsdichte gegenüber anderen Lösungsvorschlägen liegt in ihrer stets gewährleisteten Positivität sowie in ihrem engen Kontakt mit meßbaren Größen in einer physikalisch vorstellbaren Apparatur. Dafür hat man die Zuschreibung von Apparatureffekten zum resultierenden Feldspektrum in Kauf zu nehmen, wie dies in der Abhängigkeit der spektralen Leistungsdichte $G(\omega, \tau, \Gamma)$ von der Filterbreite Γ zum Ausdruck kommt.

8.3 Das Stokespektrum im stationären Fall

Die Einstrahlung am Anfang des Verstärkers soll im folgenden wiederum durch ein stationäres breitbandiges chaotischen Feld der spektralen Leistungsdichte G_0 gegeben sein, wie es durch Formel (8.7) dargestellt wird. Der Fall fehlender Einkopplung wird durch $G_0 = 0$ beschrieben. Ist nach dem Einschalten des Verstärkungsvorganges genügend viel Zeit vergangen, kann unter diesen Bedingungen auch das Stokesfeld am Ort z als stationärer Zufallsprozeß beschrieben werden. Das zugehörige Leistungsspektrum kann dann nach Formel (8.12) berechnet werden:

$$\begin{aligned} G(z, \omega) &= 2 \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \int_{-\infty}^{+\infty} d(\tau_2 - \tau_1) e^{i\omega(\tau_2 - \tau_1)} \langle \hat{\mathcal{E}}^{(-)}_s(z, \tau_1) \hat{\mathcal{E}}^{(+)}_s(z, \tau_2) \rangle \\ &= 2 \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{\hbar}{\mu_{23}} \right)^2 \int_{-\infty}^{+\infty} d(\tau_2 - \tau_1) e^{i\omega(\tau_2 - \tau_1)} \langle \hat{\nu}^\dagger_{23}(z, \tau_1) \hat{\nu}_{23}(z, \tau_2) \rangle. \end{aligned}$$

Wie man schon anhand der Ergebnisse für den Intensitätsanstieg vermuten konnte, zeigt sich, daß man $\gamma_{ph}\tau_1, \gamma_{ph}\tau_2 \gg 2\zeta$ wählen muß, um der Stationaritätsbedingung zu genügen. Benutzt man den Ausdruck (8.3) und führt die Abkürzung

$$B\left(\omega, \frac{\kappa\omega z}{2}, \gamma_{ph}, |\nu_{21}|\right) = \int_0^\infty d\tau e^{(-\gamma_{ph} + i\omega)\tau} H_n\left(\frac{\kappa\omega z}{2}\tau, |\nu_{21}|\tau\right) \quad n = 1, 2, 3$$

für die Fouriertransformierten der gedämpften Greensfunktionen ein, erhält man für die spektrale Leistungsdichte des Stokesfeldes im stationären Zustand

$$G(z, \omega) = \frac{\hbar \nu_s}{A} \frac{\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle}{\omega} \left\{ 4 \int_0^{\frac{\kappa \omega z}{2}} d\lambda \left[|B_1(\omega, \lambda, \gamma_{ph}, |\nu_{21}|)|^2 + |B_2(\omega, \lambda, \gamma_{ph}, |\nu_{21}|)|^2 \right] \right\} + G_0 \left| 1 + 2|\nu_{21}| B_3 \left(\omega, \frac{\kappa \omega z}{2}, \gamma_{ph}, |\nu_{21}| \right) \right|^2. \quad (8.14)$$

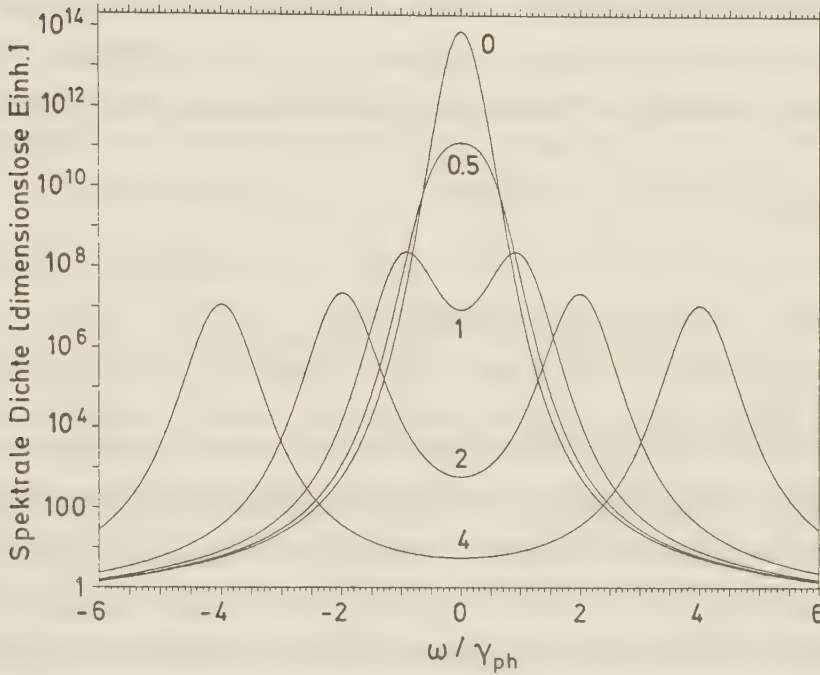


Abb. 18: Stationäres Stokesspektrum für eine fest gewählte effektive Verstärkerlänge $\zeta = 8$ und verschiedene jeweils an den Kurven vermerkte Werte von $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$. Dargestellt ist die geschweifte Klammer in (8.14) bzw. (8.16).

Die geschweifte Klammer im ersten Summanden dieser Formel, wiederum eine dimensionslose Größe, ist in Abb. 18 für $\zeta = \frac{\kappa \omega z}{2\gamma_{ph}} = 8$ dargestellt. Verglichen mit dem Fall $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 0$ beginnt sich das Spektrum bei wachsendem $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ immer stärker in zwei Komponenten aufzuspalten, die sich für größere $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ um die der Starkaufspaltung entsprechenden beiden Frequenzen $\omega = \pm|\nu_{21}|$ konzentrieren. Neben der Aufspaltung der ursprünglichen Linie in zwei Komponenten fällt eine drastische Verminderung der Peakhöhe ins Auge. Diese Peakhöhe umfaßt für große

$|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ nur noch rund halb so viele Zehnerpotenzen wie für $|\nu_{21}| = 0$. Da das Integral der spektrale Dichte über die Relation

$$\langle \hat{I}(z, \tau \rightarrow \infty) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int G(z, \omega) d\omega \quad (8.15)$$

mit dem stationären Grenzfall der Intensität (8.5) verknüpft ist, besteht ein enger Zusammenhang mit der schon in Abschnitt 8.1 diskutierten drastischen Verminderung der im stationären Fall erreichten Intensität.

Es stellt sich nun heraus, daß die Ausdrücke in (8.14), die wir zunächst mit numerischer Laplace-Rücktransformation, schneller Fouriertransformation und numerischer Integration ausgewertet hatten, korrekt durch die Ratengleichungsformel (3.4) wiedergegeben werden, wenn man für den auftretenden Einstein-B-Koeffizienten die semiklassische Verstärkung (3.10a) einsetzt. Man bekommt also

$$G(z, \omega) = \frac{\hbar \nu_s}{A} \frac{\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle}{\omega} \left\{ e^{2z \operatorname{Re}[\alpha(\omega)]} - 1 \right\} + G_0 e^{2z \operatorname{Re}[\alpha(\omega)]} \quad (8.16)$$

mit

$$\alpha(\omega) = \frac{\kappa \omega (\gamma_{ph} - i\omega)}{(\gamma_{ph} - i\omega)^2 + |\nu_{21}|^2}.$$

Wir fanden zunächst die zahlenmäßige Übereinstimmung und später den in Kapitel 9 wiedergegebenen analytischen Beweis. Einschränkend sei hier bereits angemerkt, daß diese Übereinstimmung nur besteht, solange man an den in diesem Kapitel gemachten Annahmen $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{11} \rangle = \langle \hat{\sigma}_{22} \rangle$ sowie $w_{21}, w_{31}, w_{23} \ll \gamma_{ph}$ festhält. Im allgemeinen Fall, wie er im nächsten Kapitel behandelt wird, gibt es keine Übereinstimmung mehr.

Die im vorletzten Abschnitt angesprochene, mit der Erhöhung von $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ von Null an auf Werte $\gg 1$ verbundene drastische Verminderung der Peakhöhe der spektralen Leistungsdichte manifestiert sich nun in einer Halbierung der Maxima der in Formel (8.16) auftretenden Exponenten. Die Ursache für diese Halbierung ist darin zu sehen, daß die durch genügend große $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ bewirkte Kopplung von Gleichung (6.15a) an (6.15b) nur eine neue Quelle von Dissipation in das System einführt (die dort durch die Phasenrelaxationskonstante γ_{13} beschrieben wird), aber keine Verstärkung. Die Funktion $\operatorname{Re}[\alpha(\omega)]$ spaltet sich dabei in unserem Fall $\gamma_{13} = \gamma_{23} = \gamma_{ph} > 0$ in zwei Komponenten mit der halben Höhe, aber jeweils der gleichen

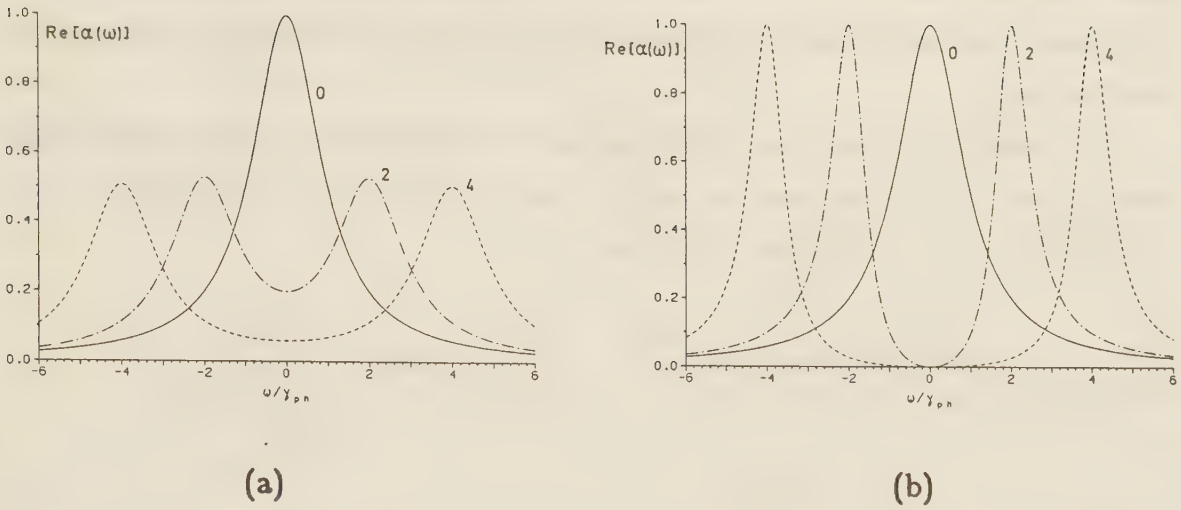


Abb. 19: Der Verstärkungskoeffizient $\text{Re}[\alpha(\omega)]$ in (8.16) für verschiedene, an den drei Kurven vermerkte Werte von ν_{21}/γ_{ph} . (a) für $\gamma_{13} = \gamma_{23} = \gamma_{ph}$, (b) für $\gamma_{13} = 0$, $\gamma_{23} = \gamma_{ph}$.

Breite wie die ursprüngliche Linie auf; siehe Abb. 19a. Setzt man jedoch bei unverändertem $\gamma_{23} = \gamma_{ph} > 0$ den Relaxationskoeffizienten γ_{13} gleich Null, würde die Funktion $\text{Re}[\alpha(\omega)]$ dagegen in zwei Komponenten mit der ursprünglichen Höhe, aber nur der Hälfte der Breite der ursprünglichen Linie aufspalten, siehe Abb. 19b.

8.4 Berechnung des zeitabhängigen Spektrums für den Anschwingvorgang des Stokesfeldes

Unmittelbar nach dem Einschalten der Verstärkung bei $\tau = 0$ weist das Stokesfeld ein extrem instationäres Verhalten auf, wie man schon an dem in Abschnitt 8.1 beschriebenen zeitlichen Anstieg des Intensitäts-Erwartungswertes erkennt. Um dem Feld während dieser Phase ein Spektrum zuzuordnen, benutzen wir die von Eberly und Wódkiewicz gegebene Definition. Wir beschränken uns auf den Fall fehlender äußerer Stokes Einkopplung und brauchen dann lediglich die Korrelationsfunktion (8.3) in den Ausdruck für das Spektrum (8.13) einzusetzen.

Ist die effektive Länge des Verstärkers sehr klein, $\zeta \ll 1$, kann man sich bei den Reihenentwicklungen (7.6) und (7.7) auf das erste Glied beschränken und entsprechend Formel (8.1) für H_1 die Sinus-, für H_2 die Kosinusfunktion einsetzen. Es lassen sich dann alle Integrationen elementar ausführen. Der so erhaltene, recht umfangreiche analytische Ausdruck zeigt schon die wesentlichsten Eigenschaften des

zeitabhängigen Leistungsspektrums. Weiter ermöglicht er eine gewisse Kontrolle der im folgenden zu besprechenden numerischen Rechnungen, die auch für größere ζ anwendbar sind.

Für beliebige ζ kann man den Ausdruck für die zeitabhängige spektrale Leistungsdichte nach Transformation auf die neuen Variablen $u = \frac{1}{2}|\nu_{21}|(\tau_1 + \tau_2)$, $v = |\nu_{21}|(\tau_1 - \tau_2)$ in der Form schreiben

$$G(z, \omega, \tau, \Gamma) = \frac{\hbar \nu_s}{A} \frac{\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle}{\omega} \frac{4\Gamma}{|\nu_{21}|} \sum_{n=1}^2 \int_0^{\frac{\kappa \omega z}{2|\nu_{21}|}} d\lambda \int_{-\infty}^{\infty} dv e^{-i \frac{\omega}{|\nu_{21}|} v} \int_{\frac{|v|}{2}}^{|\nu_{21}| \tau - \frac{|v|}{2}} du$$

$$e^{-\frac{2\Gamma}{|\nu_{21}|} (|\nu_{21}| \tau - u)} \left\{ \frac{2\gamma_{ph}}{|\nu_{21}|} \int_0^{|\nu_{21}| \tau - \frac{|v|}{2}} dq f_n(q + |v|) f_n(q) + \left[f_n(q + |v|) f_n(q) \right]_{q=u - \frac{|v|}{2}} \right\}$$

mit

$$f_n(q) = e^{-\frac{\gamma_{ph}}{|\nu_{21}|} q} H_n(\lambda q, q). \quad (8.17)$$

Die Integrale sind hier ausnahmsweise so zu verstehen, daß sie Null werden, wenn die obere Integrationsgrenze kleiner wird als die untere. Noch ein Wort zur numerischen Auswertung. Ersetzt man in den beiden in der geschweiften Klammer auftretenden Produkten von Funktionen f_n den jeweils links stehenden Faktor durch eine beliebige Testfunktion des Arguments $(q + |v|)$, stellt sich der gesamte Ausdruck unter dem v -Integral als lineares Funktional dieser Testfunktion dar. Diskretisiert man die Integrationsvariable q mit äquidistanten Abszissen, läßt sich der Wert dieses Ausdrucks für ein festes v als Skalarprodukt $\sum_i x_i y_i$ schreiben. Hierbei bezeichnen die x_i die Werte der Testfunktion an den diskreten Punkten. Es zeigt sich, daß man die Folge der x_i nur gegenüber den y_i zu verschieben und den Summationsbereich zu verändern braucht, um — bis auf einige Terme vom Rand des Integrationsbereichs und einen leicht hinzuzufügenden Vorfaktor — den Ausdruck unter dem v -Integral für jedes gewünschte v zu berechnen. Man hat also im wesentlichen nur so viele Skalarprodukte zwischen den beiden einmal berechneten Zahlenketten auszuwerten, wie man Werte für das v -Integral benötigt. Da sich Skalarprodukte auf einem Vektorrechner, wie er uns zur Verfügung stand, recht schnell auswerten lassen, ist das ein wesentlicher Vorteil. Das Integral über v wird dann als Fast Fourier

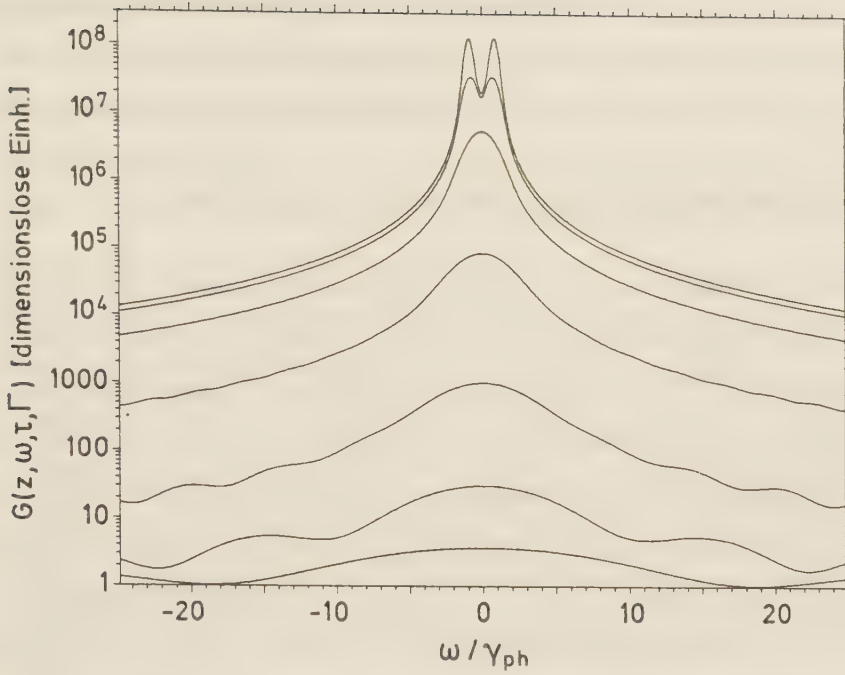


Abb. 20: Zeitabhängiges Leistungsspektrum in Einheiten von $\hbar\nu_s\langle\sigma_{22}\rangle/(Aw)$. Hier ist $\zeta = 8$, $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 1$, $\Gamma = 0.1\gamma_{ph}$ gewählt. Die retardierte Zeit τ beträgt 0.25 für die unterste Kurve, sowie nacheinander 0.5, 1, 2, 4, 8 und 16 für die Kurven darüber.

Transformation und schließlich das Integral über λ mit einer speziell für angenähert exponentiell ansteigende Funktionen entwickelten Quadraturformel ausgewertet.

In den beiden ersten Brüchen auf der rechten Seite von Formel (8.17) erkennt man zunächst den gleichen Vorfaktor wie vor der geschweiften Klammer in (8.14). Diesem Vorfaktor folgt ein dimensionsloser Ausdruck, der in Abb. 20 für den Fall $\zeta = 8$, $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 1$ zu verschiedenen Zeiten τ dargestellt ist. Man erkennt für kleine Zeiten τ zunächst nur ein einziges Maximum in der zeitabhängigen spektralen Leistungsdichte. Für größere Zeiten bilden sich dann zwei Maxima aus und schließlich nähert sich das gezeigte Spektrum, wie im Anschluß an Formel (8.13) angekündigt, der Faltung aus dem stationären Spektrum und einer Lorentzkurve der Breite Γ . Die für kleine Zeiten τ erkennbaren Wellen an den Flanken des Spektrums entsprechen Einschwingvorgängen des zur physikalischen Definition des Spektrums benutzten Fabry-Perot-Filters.

Schröder, Haake et al.⁹⁰ haben bereits die zeitabhängige spektrale Leistungsdichte für den Anschwingvorgang bei der Superfluoreszenz berechnet. Im Gegensatz

zu uns erhalten sie auch für große Zeiten keine spektrale Aufspaltung. Dies ist verständlich, da während des superfluoreszenten Feldaufbaus kein Pumpfeld wirksam ist. Dies entspricht in unserer Arbeit dem Spezialfall $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 0$, für den wir mit der geschilderten Methode ähnliche Kurven erhalten wie die genannte Arbeit.

8.5 Energiefluktuationen des stationären Stokesfeldes

Bisher haben wir, wenn von der Intensität des Stokesfeldes die Rede war, immer nur den Erwartungswert $\langle \hat{I}(z, \tau) \rangle \sim \langle \hat{\nu}_{23}^\dagger(z, \tau) \hat{\nu}_{23}(z, \tau) \rangle$ betrachtet. Nun ist $\hat{\nu}_{23}(z, \tau)$ nach Formel (8.2) in den Anfangspolarisationen, Langevinkräften und eingestrahnten Feldern linear. Da Anfangspolarisationen und Langevinkräfte nach den Bemerkungen in Abschnitt 6.1 der Gaußeigenschaft (6.13) genügen, gilt dies auch für $\hat{\nu}_{23}(z, \tau)$, sofern nicht gerade ein Stokesfeld $\hat{\nu}_{23}(z=0, \tau)$ mit anderer Charakteristik von außen in das System eingekoppelt wird. Für die Wahrscheinlichkeit pro Intensitätseinheit, an einer festgelegten Koordinate z zu einem bestimmten Zeitpunkt τ eine bestimmte Intensität I zu messen, erhält man dann eine Exponentialverteilung

$$p(I) = \frac{1}{\langle \hat{I}(z, \tau) \rangle} e^{-\frac{I}{\langle \hat{I}(z, \tau) \rangle}}. \quad (8.18)$$

Hier wie im Rest dieses Abschnitts wird vorausgesetzt, daß Verstärkung und damit $\langle \hat{I}(z, \tau) \rangle$ bereits makroskopisch große Werte haben. Andernfalls hat man statt einer Serie klassischer Intensitätsmessungen eine Photonenzählstatistik auszuwerten; die Verallgemeinerung auf diesen Fall ist jedoch nicht schwierig^{91,92} und gibt eine Bose-Einstein-Verteilung.

Eine realistische Meßapparatur mißt im allgemeinen nicht die Intensität in einem bestimmten Augenblick, sondern stattdessen beispielsweise die Energie W , die pro Flächeneinheit den Punkt z innerhalb einer festgelegten Zeitspanne T passiert. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung dieser Energien W ist für den Fall der nichtresonanten Ramanstreuung bei fehlender Stokesfeldeinkopplung bereits in verschiedenen Arbeiten für zwei unterschiedliche Grenzfälle untersucht worden:

- a) Zum einen theoretisch^{92,93} und experimentell⁹⁴ für Energiemessungen innerhalb derart kurzer Zeiten $\gamma_{ph}\tau \ll 1$ nach dem Einschalten des Pumppulses, daß die anfängliche Ramanpolarisation $\hat{\sigma}_{31}(z', \tau=0)$ in Formel (6.21) hier noch nicht merklich zerfallen kann. Der von $\hat{\sigma}_{31}(z', \tau=0)$ herrührende

Term in (6.21) bestimmt dann das entstehende Stokesfeld und damit auch die Statistik der erzeugten Stokesenergie W . Die genannten Arbeiten geben für die Größe W in guter Näherung eine Exponentialverteilung.

- b) Zum anderen gibt es eine theoretische Analyse⁹⁵ für Energiemessungen, die derart lange Zeiten $\gamma_{ph}\tau \gg 1$ nach dem Einschalten des Pumplasers beginnen, daß die Anfangspolarisation längst zerfallen ist und das entstehende Stokesfeld ausschließlich durch den von den Langevinkräften herrührenden letzten Term in Gleichung (6.21) bestimmt wird. Im so gegebenen stationären Zustand hängt die erhaltene Statistik entscheidend von der Länge des Intervalls T ab, über das die Energie gemessen wird. Im Grenzfall langer Meßzeiten $\gamma_{ph}T \gg 1$ erhält man durch die Mittelung über sehr viele statistisch unabhängige Fluktuationen schließlich eine sehr scharfe Verteilung $p(W) = \delta(W - \langle W \rangle)$. Für kleine Intervalle $\gamma_{ph}T \ll 1$ erhält man dagegen eine angenähert exponentielle Energieverteilung analog zur Intensitätsverteilung (8.18).

Daß die Verteilungsfunktion für W im Fall a) die gleiche Form aufweist wie diejenige für kurze Meßzeiten im Fall b), findet seine Erklärung in der Struktur des Ausdrucks (6.21) für $\hat{\nu}_{23}(z, \tau)$, wo $\hat{\sigma}_{31}(z', \tau=0)$ und $\hat{\Gamma}_{31}(z', \tau')$ mit der gleichen Greensfunktion multipliziert auftauchen. Eine analoge Übereinstimmung ist aus dem gleichen Grund auch für die Energieverteilung des von uns betrachteten Stokesfeldes (8.2) zu erwarten. Wir beschränken daher unsere Rechnungen auf den stationären Zustand und legen hier das Schwergewicht auf den Fall kleiner Werte $\gamma_{ph}T$. Dieser Fall eignet sich am besten für einen Vergleich mit den Ergebnissen der zitierten Arbeiten. Die Einengung der Energieverteilung für größere $\gamma_{ph}T$ vollzieht sich, wie sich zeigt, recht ähnlich wie bei der nichtresonanten Ramanstreuung.

Für die Bestimmung der Wahrscheinlichkeitsverteilung $p(W)$ benutzen wir die von Raymer et al.⁹² vorgeschlagene Methode. Dabei sucht man für die im Intervall T abgestrahlte Energie zunächst eine Darstellung als hermitesche Form

$$W = \sum_{i,j=1}^M A_{ij} q_i^\dagger q_j \quad (8.19)$$

mit diskreten gaußschen Einheits-Rauschoperatoren $q_i^\dagger, q_j$ mit $\langle q_i^\dagger q_j \rangle = \delta_{ij}$. Es ist nun bekannt,^{69,71,96} daß sich Erwartungswerte von normal geordneten Funktionen

solcher Operatoren als gewöhnliche Integrale über gaußsche Verteilungsfunktionen schreiben lassen. Für die charakteristische Funktion der Energie W kann man dieses Integral nach geeigneter Hauptachsentransformation sehr einfach auswerten. Aus den Eigenwerten λ_i der Matrix A_{ij} erhält man die Wahrscheinlichkeitsverteilung

$$p(W) = \sum_{i=1}^M \frac{\lambda_i^{M-2} e^{-\frac{W}{\lambda_i}}}{(\lambda_i - \lambda_1)(\lambda_i - \lambda_2) \dots (\lambda_i - \lambda_M)}, \quad (8.20)$$

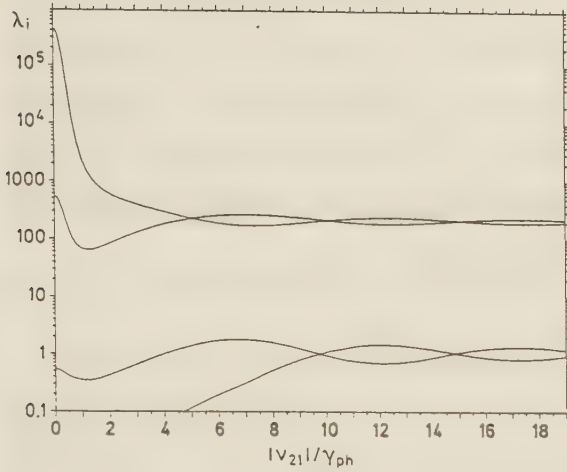
wobei im Nenner jedes Summanden der i te Faktor fehlt. Es stellt sich nun die Frage, wie man die in (8.19) geforderte Diskretisierung der Rauschoperatoren vornehmen soll. Die zu Beginn dieses Abschnitts genannte Arbeit⁹² behandelt den oben unter a) beschriebenen Fall, wo $\hat{\sigma}_{31}(z, \tau=0)$ als einzige Rauschquelle auftritt. Eine Zerlegung der z -Achse in kleine, nicht zu lange Abschnitte Δz gibt die gewünschte Diskretisierung. Da es in der genannten Arbeit nur um nichtresonante Ramanstreuung geht, kann man von den Integrationsformeln der modifizierten Besselfunktionen Gebrauch machen und so die Matrix A_{ij} mit wenig Zeitaufwand berechnen. Auf beide Vorzüge muß man verzichten, wenn man bei der von uns ins Auge gefaßten resonanten Raman- bzw. Hyper-Raman-Streuung von Formel (8.2) ausgeht. Da die in diesem Fall maßgeblichen Rauschquellen $\hat{\Gamma}_{31}(z', \tau')$ und $\hat{\Gamma}_{32}(z', \tau')$ von zwei Variablen abhängen, ist erstens eine vernünftige Diskretisierung mit einer nicht zu großen Matrix A_{ij} kaum möglich. Zweitens gibt es für A_{ij} keinen analytischen Ausdruck. Beide Probleme verschwinden, wenn man im Vorgriff auf die später in Abschnitt 9.3 entwickelte Methode mit dem im Frequenzraum erscheinenden Rauschen rechnet. Bezeichnet man mit A die Querschnittsfläche des Verstärkers, benutzt für die Intensität die Formel (8.4) und anschließend für ν_{23} den Ausdruck (9.9), kann man die während der Zeitspanne T vom Verstärker abgestrahlte Energie W in der Form schreiben

$$\begin{aligned} W &= A \int_{-T/2}^{T/2} I(z, \tau) d\tau = 2A \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{\hbar}{\mu_{23}} \right)^2 \int_{-T/2}^{T/2} |\nu_{23}(z, \tau)|^2 d\tau \\ &= \hbar \nu_s \frac{\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle}{w} \frac{\Delta \omega}{2\pi} \sum_{\omega_i, \omega_j} \left(\int_{-T/2}^{T/2} e^{i(\omega_i - \omega_j)\tau} d\tau \right) e^{z \operatorname{Re}[\alpha(\omega_i)]} e^{z \operatorname{Re}[\alpha(\omega_j)]} u_i^* u_j. \end{aligned}$$

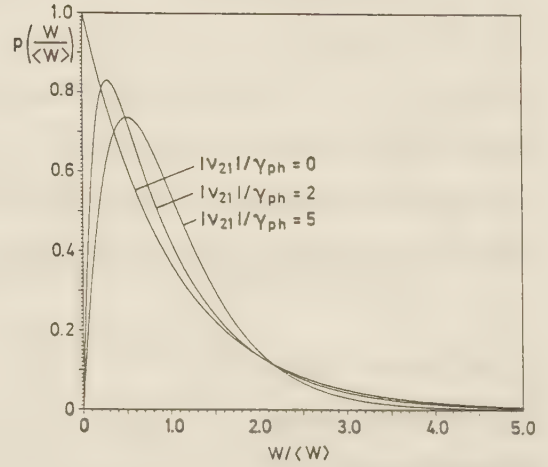
In der zweiten Zeile wurde vom Exponenten im Ausdruck (9.9) lediglich der Realteil mitgenommen, was einer Phasentransformation der Zufallsgrößen u_i, u_j entspricht.

Die Größe β hat für den in diesem Kapitel interessierenden Fall $\Delta = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{11} \rangle = \langle \hat{\sigma}_{22} \rangle$ den Wert $\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle / w$. Man hat also nun für W eine Darstellung der Form (8.19) mit den Matrixelementen

$$A_{ij} = \hbar \nu_s \frac{\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle}{w} \frac{\Delta \omega}{2\pi} \left\{ \begin{array}{ll} \frac{2 \sin [(\omega_i - \omega_j)T/2]}{\omega_i - \omega_j} & \text{für } i \neq j \\ T & \text{für } i = j \end{array} \right\} e^{z \operatorname{Re}[\alpha(\omega_i)]} e^{z \operatorname{Re}[\alpha(\omega_j)]}. \quad (8.21)$$



(a)



(b)

Abb. 21: Eigenwerte und Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Energiefluktuationen im stationären Zustand für $\zeta = 4$, $\gamma_{ph}\Delta\tau = 2\pi/10$. (a) Eigenwerte der Matrix (8.21) als Funktion von $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$; (b) Wahrscheinlichkeitsverteilung $p(W)$ für drei verschiedene Werte von $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$.

Die Eigenwerte dieser reell-symmetrischen Matrix lassen sich leicht numerisch bestimmen. Die größeren von ihnen hängen bei genügend enger Schrittweite $\Delta\omega$ und genügend hoher Zahl von Punkten M nicht mehr merklich von diesen Diskretisierungsparametern ab. In Abb. 21a sind die höchsten vier Eigenwerte für den Fall $\zeta = 4$, $\gamma_{ph}T = 2\pi/10$ in Abhängigkeit von $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ dargestellt. Für $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 0$ liegt der höchste Eigenwert λ_1 in erheblichem Abstand über allen übrigen Eigenwerten. In Formel (8.20) überwiegt dann der Term mit $-W/\lambda_1$ im Exponenten. Man erhält eine nahezu exponentiell abfallende Wahrscheinlichkeitsverteilung für die Energiewerte. Sie ist in Abb. 21b in der entsprechenden Kurve dargestellt.

Dies stimmt mit den Ergebnissen der oben genannten Arbeit⁹⁵ überein. Für größere Werte von $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ nähern sich die beiden höchsten Eigenwerte einander und überkreuzen sich schließlich in unmittelbarer Nähe des Punktes $|\nu_{23}|/\gamma_{ph} = 5$, wo für den gewählten Wert $\gamma_{ph}T = 2\pi/10$ gerade $|\nu_{21}|T = \pi$ wird. Dort nimmt die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Energiewerte angenähert die Form

$$p(W) = \frac{4W}{\langle W \rangle^2} e^{-2\frac{W}{\langle W \rangle}} \quad (8.22)$$

an. Wie man anhand von Abb. 21b sieht, ist diese Verteilung stärker in der Nähe des Mittelwertes konzentriert als die angenähert exponentielle Verteilung für $|\nu_{21}|/\gamma_{ph} = 0$. Eine einfache Erklärung bekommt man, wenn man idealisierend davon ausgeht, daß das Stokesfeld für große $|\nu_{21}|/\gamma_{ph}$ im wesentlichen nur die zwei der Stark-Aufspaltung entsprechenden Frequenzkomponenten enthält. Daß man also für ein einzelnes Glied des statistischen Ensembles

$$\nu_{23}(z, \tau) = \nu_{23+} e^{i|\nu_{21}|\tau} + \nu_{23-} e^{-i|\nu_{21}|\tau}$$

mit zeitunabhängigen komplexen Amplituden ν_{23+} , ν_{23-} schreiben kann. Die interessierende Energie W ist dann proportional zu dem Ausdruck

$$\begin{aligned} \int_{-T/2}^{T/2} \nu_{23}^*(z, \tau) \nu_{23}(z, \tau) d\tau = & T|\nu_{23+}|^2 + T|\nu_{23-}|^2 \\ & + (\nu_{23+}^* \nu_{23-} + \nu_{23-}^* \nu_{23+}) \frac{\sin(|\nu_{21}|T)}{|\nu_{21}|}. \end{aligned} \quad (8.23)$$

Sind die Amplituden ν_{23+} , ν_{23-} als unabhängige komplexe gaußsche Zufallsprozesse mit gleicher Streuung und Mittelwert Null gegeben, lassen sich ihre Absolutquadrate $|\nu_{23+}|^2$ und $|\nu_{23-}|^2$ durch unabhängige Exponentialverteilungen charakterisieren, deren Mittelwerte übereinstimmen. Ist $|\nu_{21}|T$ gleich π oder ein mehrfaches davon, verschwindet der letzte Term in (8.23) und man erhält die Wahrscheinlichkeitsverteilung für die interessierende Energie W aus der Faltung der beiden genannten Exponentialverteilungen. Dies gibt eine χ^2 - Verteilung von genau der Form (8.22).

Diese Interpretation wird durch die in Abb. 21 gezeigten numerischen Ergebnisse gestützt. Nach Abb. 21a kreuzen sich die beiden höchsten Eigenwerte angenähert periodisch in der Nähe der Punkte $|\nu_{21}|T = n\pi$, $n = 1, 2, 3, \dots$ und entfernen sich zwischendurch wieder voneinander, wobei die Amplitude dieser Oszillationen

mit wachsendem $|\nu_{21}|T$ abnimmt. Die Wahrscheinlichkeitsverteilungen $p(W)$ haben an den Kreuzungspunkten angenähert die Form (8.22); dazwischen weichen sie in Richtung mehr exponentieller Verteilungen von dieser Form ab, allerdings mit wachsendem $|\nu_{21}|T$ immer weniger.

In dem hier behandelten System führen also nicht nur — wie in den bisher bekannten Fällen — Relaxationsprozesse, sondern auch durch das Pumpfeld bewirkte Rabioszillationen während der betrachteten Meßzeit T zu einer schmalen Verteilung der gemessenen Energiewerte. Allerdings bleibt das Ausmaß der so erzielbaren Einengung begrenzt, da auch eine Vielzahl von Pump-Rabioszillationen nur höchstens einen weiteren Freiheitsgrad des Systems — nämlich die Ramanpolarisation $\hat{\sigma}_{31}$ — an die Stokespolarisation $\hat{\sigma}_{32}$ und damit an das erzeugte Feld koppeln kann. Die Einengung durch Relaxationsprozesse kann demgegenüber für große Werte $\gamma_{ph}T$ zu beliebig schmalen Energieverteilungen führen.

9. Die Umkehrung der Laplacetransformation im allgemeinen Fall

Die Verallgemeinerung der in den letzten beiden Kapiteln gewonnenen Resultate auf den allgemeinen Fall, in dem Δ und $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle$ nicht notwendigerweise Null sein müssen, ist im Prinzip mit Hilfe der auch bisher angewandten Technik möglich. Jedoch legt ein Vergleich von Formel (8.14) mit dem analytischen Ausdruck (8.16) den Gedanken nahe, wenn nicht für die räumlich-zeitlichen Greensfunktionen selbst, so doch für ihre zeitlich Fouriertransformierten nach einer analytischen Darstellung zu suchen. Gelingt es dann, eine möglichst allgemeingültige Darstellung zu finden, könnte man den Einfluß der verschiedensten Systemparameter auf das Stokesfeld in übersichtlicher Weise erfassen.

Ausgangspunkt für dieses Vorhaben ist die Formel (6.25). Von all den Faktoren, die vor dem eingekoppelten Feld, den Operatoren der Anfangspolarisation und den Langevinkräften auftauchen, sind die zeitlich Fouriertransformierten der räumlich Laplace-Rücktransformierten zu bilden. Dies soll hier am Beispiel des Faktors vor

den Operatoren $\sigma_{31}^L(s, \tau=0)$ und $\Gamma_{31}^L(s, \tau')$ vorgeführt werden. Man erhält hier

$$\begin{aligned}
 B_1'(z, \omega) &= \int_0^\infty d\tau e^{i\omega\tau} \mathcal{L}^{-1} \left\{ \frac{|\nu_{21}|}{s} \frac{e^{\lambda_1\tau} - e^{\lambda_2\tau}}{2D} \right\} \\
 &= \mathcal{L}^{-1} \left\{ \frac{|\nu_{21}|}{s} \frac{\int_0^\infty e^{(\lambda_1+i\omega)\tau} d\tau - \int_0^\infty e^{(\lambda_2+i\omega)\tau} d\tau}{2D} \right\} \\
 &= \mathcal{L}^{-1} \left\{ \frac{|\nu_{21}|}{2Ds} \left(\frac{-1}{\lambda_1 + i\omega} - \frac{-1}{\lambda_2 + i\omega} \right) \right\} \\
 &= \mathcal{L}^{-1} \left\{ \frac{|\nu_{21}|}{s} \frac{1}{(-\gamma_{ph} + i\frac{\Delta}{2} + \frac{\kappa\omega}{2s} + i\omega)^2 - D^2} \right\}.
 \end{aligned}$$

In der ersten Zeile ist die gesuchte Größe formal hingeschrieben; da die Greensfunktion aus Kausalitätsgründen für $\tau < 0$ verschwindet, kann die Integration auf positive Werte von τ beschränkt werden. In der zweiten Zeile werden Fourierintegration und Laplace-Rücktransformation vertauscht. Zuletzt stellt sich die gesuchte Größe nach Einsetzen der Ausdrücke (6.24) als Laplace-Rücktransformierte einer rationalen Funktion dar. Dafür kann man mit elementaren Mitteln einen analytischen Ausdruck bekommen. Ein entscheidender Punkt beim Übergang von der zweiten zur dritten Zeile ist das Weglassen der Beiträge von den oberen Integrationsgrenzen. Eine Rechtfertigung für ein solches Vorgehen ist leicht zu finden. Benutzt man nämlich das komplexe Umkehrintegral (7.9) für die Laplace-Rücktransformation $\mathcal{L}^{-1}$, läßt sich bei genügend großer Abszisse s_0 immer erreichen, daß λ_1 und λ_2 auf dem gesamten Integrationsweg der komplexen Umkehrformel einen negativen Realteil haben.

Es ist eigentlich erstaunlich, daß eine derart einfache Ableitung, die auch auf sehr direkte Weise einen analytischen Ausdruck für das stationäre Spektrum liefert, unseres Wissens nach in derartigen Zusammenhängen noch nie benutzt worden ist. So wurde das in der oben genannten Arbeit⁹⁵ angegebene stationäre Spektrum für die nichtresonante Ramanstreuung auf dem Umweg über die modifizierten Besselfunktionen gewonnen, ein nicht nur kompliziertes, sondern auch wenig verallgemeinerungsfähiges Verfahren.

Für die zeitlich Fouriertransformierten der gesuchten Greensfunktionen bekommt man nun nach einiger Rechnung

$$\begin{aligned} B'_1(z, \omega) &= \frac{|\nu_{21}|}{(\gamma_{ph} - i\omega - i\Delta)(\gamma_{ph} - i\omega) + |\nu_{21}|^2} e^{\alpha z} \\ B'_2(z, \omega) &= \frac{\gamma_{ph} - i\omega - i\Delta}{(\gamma_{ph} - i\omega - i\Delta)(\gamma_{ph} - i\omega) + |\nu_{21}|^2} e^{\alpha z} \\ B'_3(z, \omega) &= \frac{1}{2|\nu_{21}|} [e^{\alpha z} - 1]. \end{aligned} \quad (9.1)$$

Für den Faktor α im Exponenten findet man dabei gerade den semiklassischen Verstärungskoeffizienten (3.10a) für die Feldamplitude:

$$\alpha = \kappa \frac{(\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle - \langle \hat{\sigma}_{33} \rangle)(\gamma_{ph} - i\omega - i\Delta) - i\nu_{21} \langle \hat{\sigma}_{21} \rangle}{(\gamma_{ph} - i\omega - i\Delta)(\gamma_{ph} - i\omega) + |\nu_{21}|^2}. \quad (9.2)$$

Für die Fourier-Rücktransformierte der Funktionen B'_n soll die Abkürzung

$$H'_n(z, \tau) = \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega\tau} B'_n(z, \omega) \frac{d\omega}{2\pi} \quad n = 1, 2, 3 \quad (9.3)$$

gebraucht werden. Für den Spezialfall $\Delta = 0$, $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle = 0$ besteht der Zusammenhang

$$H'_n(z, \tau) = e^{-\gamma_{ph}\tau} H_n\left(\frac{\kappa\omega}{2}\tau z, |\nu_{21}|\tau\right) \quad n = 1, 2, 3$$

mit den früher definierten Funktionen (8.1). Dabei ist zu beachten, daß die Funktionen $H'_n(z, \tau)$ außer von z und τ auch noch von den Systemparametern wie beispielsweise γ_{ph} , $|\nu_{21}|$ und κ abhängen, während die früher definierten Funktionen $H_n(az, c)$ für den damals behandelten Spezialfall so konstruiert werden konnten, daß sie tatsächlich nur von den explizit in den Klammern angegebenen beiden Argumenten az und c abhängen.

Mit Hilfe der neu definierten Funktionen $H'_n(z, \tau)$ kann man den Ausdruck (8.2) auf beliebige Werte von Δ und $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle$ verallgemeinern. Gleichung (6.25) gibt mit

dem Laplace-Faltungstheorem

$$\begin{aligned}
 \hat{\nu}_{23}(z, \tau) = & \hat{\nu}_{23}(0, \tau) + 2|\nu_{21}| \int_0^\tau d\tau' H'_3(z, \tau - \tau') \hat{\nu}_{23}(0, \tau') \\
 & - \kappa \frac{\nu_{21}}{|\nu_{21}|} \int_0^z dz' H'_1(z - z', \tau) \hat{\sigma}_{31}(z', 0) - i\kappa \int_0^z dz' H'_3(z - z', \tau) \hat{\sigma}_{32}(z', 0) \\
 & - \kappa \frac{\nu_{21}}{|\nu_{21}|} \int_0^\tau d\tau' \int_0^z dz' H'_1(z - z', \tau - \tau') \Gamma_{31}(z', \tau') \\
 & - i\kappa \int_0^\tau d\tau' \int_0^z dz' H'_2(z - z', \tau - \tau') \Gamma_{32}(z', \tau').
 \end{aligned} \tag{9.4}$$

Für die Berechnung instationärer Zustände des Stokesfeldes (man denke an den im vorangehenden Kapitel für einen Spezialfall diskutierten Feldanstieg nach dem Einschalten der Verstärkung) benötigt man im allgemeinen die räumlich-zeitlichen Greensfunktionen $H'_n(z, \tau)$. Sie lassen sich aus den analytischen Ausdrücken (9.1) entsprechend Formel (9.3) durch numerische Fouriertransformation erhalten. Viele Fragen zu Erwartungswerten und statistischen Verteilungen physikalischer Größen in stationären Zuständen lassen sich hingegen aus der Kenntnis der Größen $B'_n(z, \omega)$ direkt beantworten. Als Beispiel wird im folgenden Abschnitt das Spektrum des Stokesfeldes und seine Intensität im stationären Zustand diskutiert.

9.1 Die spektrale Leistungsdichte des Stokesfeldes im stationären Fall

Für den Anfang des Verstärkers bei $z = 0$ gehen wir von einem breitbandigen Stokesfeld der spektralen Dichte G_0 aus, wie es durch Formel (8.7) beschrieben wird. Der Fall fehlender Einkopplung entspricht $G_0 = 0$. Um die durch (8.12) definierte spektrale Leistungsdichte am Punkt z im stationären Zustand zu berechnen, benutzt man die Darstellung (9.4) mit den Korrelationsfunktionen (6.9) für die Langevinkräfte. Man erhält ein ähnliches Resultat wie früher in (8.14). Allerdings sind für die fouriertransformierten Greensfunktionen nun die allgemeineren Ausdrücke (9.1) einzusetzen. Auch die veränderte Korrelation der Langevinkräfte hat Folgen. Weil $\hat{\Gamma}_{31}(z, \tau)$ und $\hat{\Gamma}_{32}(z, \tau)$ im allgemeinen Fall nicht mehr als unkorreliert angesehen

werden können, treten im Resultat gemischte Produkte verschiedener Greensfunktionen auf. Die Auswertung gibt schließlich

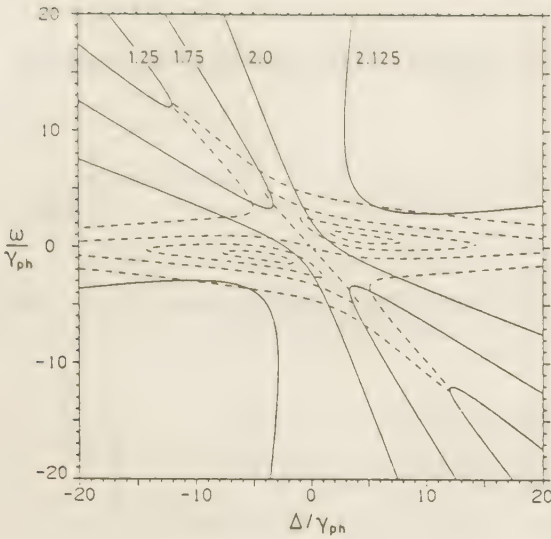
$$G(z, \omega) = \frac{\hbar \nu_s}{A} \beta \left[e^{2z \operatorname{Re}(\alpha)} - 1 \right] + G_0 e^{2z \operatorname{Re}(\alpha)}, \quad (9.5)$$

wobei α durch den semiklassischen Amplitudenverstärkungskoeffizienten (9.2) und β durch den Ausdruck

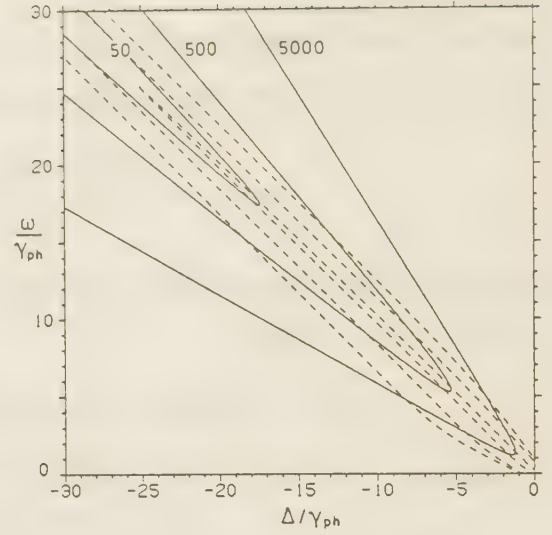
$$\beta = \frac{\left[|\nu_{21}|^2 (w_{21} \langle \hat{\sigma}_{22} \rangle + w_{31} \langle \hat{\sigma}_{33} \rangle + 2\gamma_{ph} \langle \hat{\sigma}_{11} \rangle) + (-w_{21} - w_{23} + 2\gamma_{ph}) [\gamma_{ph}^2 + (\omega + \Delta)^2] \langle \hat{\sigma}_{22} \rangle + 2(-\gamma_{12} + 2\gamma_{ph}) \operatorname{Re}[-i\nu_{21}(\gamma_{ph} + i\omega + i\Delta) \langle \hat{\sigma}_{21} \rangle] \right]}{\left[2\gamma_{ph} [\gamma_{ph}^2 + |\nu_{21}|^2 + (\omega + \Delta)^2] [\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle - \langle \hat{\sigma}_{33} \rangle] + 2 \operatorname{Re}[-i\nu_{21} \{ (\gamma_{ph} + i\omega + i\Delta)(\gamma_{ph} + i\omega) + |\nu_{21}|^2 \} \langle \hat{\sigma}_{21} \rangle] \right]}$$

gegeben ist. Die spektrale Leistungsdichte des eingekoppelten Signals wird also einfach um den semiklassischen Exponentialfaktor $e^{2z \operatorname{Re}(\alpha)}$ verstärkt. Der gleiche Exponentialfaktor bestimmt offenbar auch das Anwachsen des ersten, von spontanen Prozessen herrührenden Beitrags zur Formel (9.5). Vor diesem Beitrag steht jedoch ein nur quantenmechanisch zu berechnender Vorfaktor, bestehend aus einer die Photonenenergie enthaltenden Konstanten und dem dimensionslosen Faktor β .

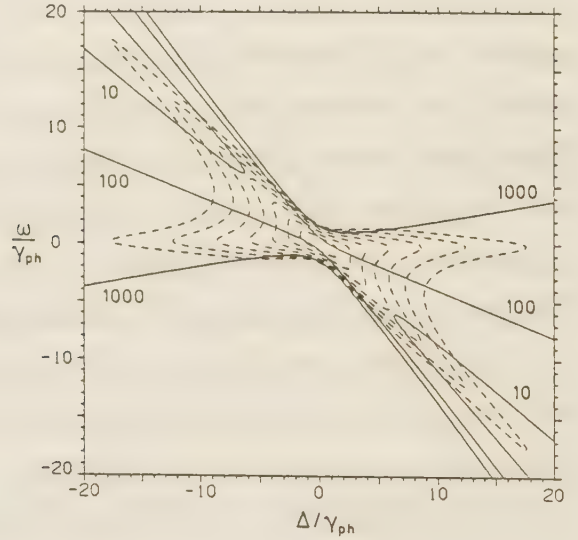
Es ist nun eine interessante Frage, ob die Änderungen dieses Beitrags, die man bei Variation von Δ und ω beobachtet, eher durch die Änderungen des Faktors β bestimmt werden oder durch Änderungen des Exponentialfaktors. Einige Plots mit verschiedenen Werten für die Parameter $|\nu_{21}|$, γ_{12} , γ_{ph} , w_{21} , w_{23} und w_{31} sind hierzu in Abb. 22 gezeigt. Für eine grobe Schätzung genügt es, die Variationen der Größe β innerhalb des Bereiches zu betrachten, in dem sich die Größe $2 \operatorname{Re}(\alpha)$ um nicht mehr als 10% von ihrem Maximum entfernt. Nur dieser Bereich nämlich trägt bei größeren Verstärkungen merklich zum Ausgangssignal (9.5) bei. Ist die Relaxationskonstante w_{32} deutlich kleiner als w_{31} , so daß die Inversion $\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle - \langle \hat{\sigma}_{33} \rangle$ weitgehend den Verlauf des Verstärkungsprozesses bestimmt, variiert die Größe β in diesem Bereich im allgemeinen nur sehr wenig, siehe Abb. 22a. Anders ist die Situation, wenn man für w_{23} und w_{31} eng benachbarte Werte einsetzt, so daß der Einfluß der atomaren Kohärenz $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle$ dominiert. Ein erstes Beispiel für diesen Fall ist in Abb. 22b gezeigt. Variiert man hier die Pumpverstimmung Δ und beschränkt sich bei jedem Δ auf



(a)



(b)



(c)

Abb. 22: Höhenlinien für $2 \operatorname{Re}(\alpha)$ (gestrichelt) und β (durchgezogen). An den durchgezogenen Linien sind die zugehörigen β -Werte vermerkt. (a) $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\gamma_{12} = \gamma_{ph}$, $w_{21} = 0$, $w_{23} = 0.1\gamma_{ph}$, $w_{31} = 0.2\gamma_{ph}$. Gestrichelte Höhenlinien bei 90%, 60%, 30% und 10% des $0.292\kappa/\gamma_{ph}$ betragenden Maximalwertes von $2 \operatorname{Re}(\alpha)$. (b) $|\nu_{21}| = 0.4433\gamma_{ph}$, $\gamma_{12} = 1.195\gamma_{ph}$, $w_{21} = 0$, $w_{23} = w_{31} = 1.9298 \times 10^{-4}\gamma_{ph}$. Gestrichelte Höhenlinien bei 90%, 30% und 10% des $5.5 \times 10^{-5}\kappa/\gamma_{ph}$ betragenden Maximalwertes von $2 \operatorname{Re}(\alpha)$. (c) $|\nu_{21}| = 1 \times 10^{-3}\gamma_{ph}$, $\gamma_{12} = 3.95\gamma_{ph}$, $w_{21} = 0$, $w_{23} = 0.01926\gamma_{ph}$, $w_{31} = 0.01935\gamma_{ph}$. Gestrichelte Höhenlinien bei $2 \operatorname{Re}(\alpha)$ -Werten von $2^n \times 10^{-7}\kappa/\gamma_{ph}$, $n = 2, 1, 0, -1, -2, -3, -4$.

Stokesfrequenzen im Bereich der gestrichelten 90% -Linie, variieren die maßgeblichen β -Werte um mehrere Zehnerpotenzen. Ein anderer interessanter Fall ist in Abb. 22c gezeigt. Für ein Pumpfeld mit einer festen Verstimmung von beispielsweise $\Delta = 12\gamma_{ph}$ bekommt man hier für zwei recht unterschiedliche Stokesfrequenzen ω zwei Verstärkungsmaxima von angenähert gleicher Höhe. Die Größe β kann dann für die beiden Peaks sehr differieren und so das Intensitätsverhältnis der beiden Linien deutlich verschieben.

Als einfache Anwendung der Formel (9.5) sei zuletzt noch daran erinnert, daß man die Stokesintensität im stationären Zustand wie in (8.15) einfach als Integral über die spektrale Leistungsdichte erhält.

9.2 Einschränkende Bedingungen für die Phasenrelaxationskoeffizienten

Es stellt sich nun die Frage, inwieweit die Phasenrelaxationskoeffizienten γ_{12} , γ_{13} und γ_{23} des hier untersuchten effektiven Dreiniveausystems unabhängig voneinander beliebige Werte haben können. Die in Abschnitt 6.4 gemachte Einschränkung auf den Fall $\gamma_{13} = \gamma_{23}$ soll in diesem Zusammenhang außer Betracht bleiben, da sie lediglich der Vereinfachung der Rechnungen diene.

Zunächst soll der Anteil der spontanen Übergangsraten zwischen den Niveaus, wie sie durch die Zerfallskonstanten w_{21} , w_{23} und w_{31} gekennzeichnet werden, zu den Phasenrelaxationskoeffizienten γ_{mn} betrachtet werden. Ob man nun diese Besetzungszahländerungen durch eine phänomenologisch eingeführte Dämpfung der Wahrscheinlichkeitsamplituden a_1 , a_2 , a_3 in der Zustandsdarstellung $|\psi\rangle = a_1|1\rangle + a_2|2\rangle + a_3|3\rangle$ beschreibt⁹⁷ oder quantenstatistische Methoden benutzt,⁶⁷ in jedem Fall erhält man als Beitrag zu γ_{mn} die halbe Summe aller Zeitkonstanten w_{mk} und w_{nk} für diejenigen Zerfälle, die von den Niveaus m und n ihren Ausgang nehmen. Die Phasenrelaxationskonstanten im hier interessierenden Dreiniveausystem lassen sich dann als Summe

$$\begin{aligned}\gamma_{12} &= \gamma_{21} = \frac{1}{2}(w_{21} + w_{23}) + \gamma_{21}^c \\ \gamma_{13} &= \gamma_{31} = \frac{1}{2}w_{31} + \gamma_{31}^c \\ \gamma_{23} &= \gamma_{32} = \frac{1}{2}(w_{21} + w_{23} + w_{31}) + \gamma_{23}^c\end{aligned}$$

der aus den Übergangswahrscheinlichkeiten resultierenden Beiträge und zusätzlicher Terme γ_{21}^c , γ_{23}^c , γ_{31}^c schreiben. Die Größen γ_{21}^c , γ_{23}^c , γ_{31}^c rühren von phasenzerstörenden Prozessen her, beispielsweise von Stößen, denen die aktiven Atome ausgesetzt sind. Akzeptiert man für γ_{21}^c , γ_{23}^c , γ_{31}^c nur die Beschränkung auf positive Werte und nimmt sie im übrigen als unabhängig an, findet man für manche Kombinationen der Relaxationszeitkonstanten negative Werte für die spektrale Leistungsdichte (9.5). In all diesen Fällen ist die Kreuzkorrelation zwischen $\hat{\Gamma}_{31}$ und $\hat{\Gamma}_{32}$ zu stark im Vergleich zur Autokorrelation der Operatoren $\hat{\Gamma}_{31}$ und $\hat{\Gamma}_{32}$.

Eine Auflösung des Paradoxons ist durch eine einschränkende Bedingung für die zulässigen Tripel γ_{21}^c , γ_{23}^c , γ_{31}^c möglich. Sie ist unseres Wissens nach bisher nirgends gefunden oder angegeben worden. Im folgenden wird eine solche Bedingung anhand einer einfachen Modellvorstellung für die phasenzerstörenden Effekte hergeleitet. Ausgangspunkt ist eine für Zweiniveausysteme entwickelte Näherung.⁹⁷ Hier wird der Einfluß phasenzerstörender Stöße durch zeitlich schwankende Abweichungen der atomaren Übergangsfrequenzen $\omega_{mn}(t)$ von ihrem Mittelwert simuliert. Bezeichnet man diese Abweichungen mit $\tilde{\omega}_{mn}(t) = \omega_{mn}(t) - \langle \omega_{mn}(t) \rangle$ und nimmt eine Korrelation mit kurzem Gedächtnis

$$\langle \tilde{\omega}_{mn}(t) \tilde{\omega}_{mn}(t') \rangle = 2\gamma_{mn}^c \delta(t - t') \quad (9.6)$$

an, kann man zeigen, daß diese Schwankungen den gemittelten Bewegungsgleichungen des Systems gerade die richtige Relaxationszeitkonstante γ_{nm}^c hinzufügen. Will man dieses Schema auf Dreiniveausysteme erweitern, muß man bedenken, daß hier eine Kopplung zwischen den Schwankungen der einzelnen Übergangsfrequenzen besteht. So gilt $\tilde{\omega}_{21}(t) = \tilde{\omega}_{23}(t) + \tilde{\omega}_{31}(t)$ und dementsprechend

$$\begin{aligned} \langle \tilde{\omega}_{21}(t) \tilde{\omega}_{21}(t') \rangle &= \langle \tilde{\omega}_{23}(t) \tilde{\omega}_{23}(t') \rangle + \langle \tilde{\omega}_{31}(t) \tilde{\omega}_{31}(t') \rangle \\ &+ \langle \tilde{\omega}_{23}(t) \tilde{\omega}_{31}(t') \rangle + \langle \tilde{\omega}_{31}(t) \tilde{\omega}_{23}(t') \rangle. \end{aligned} \quad (9.7)$$

Welche Vielzahl von Tripeln γ_{21}^c , γ_{23}^c , γ_{31}^c trotz der genannten Kopplung noch möglich ist, läßt sich an einigen Beispielen zeigen. Erfolgen die Schwankungen $\tilde{\omega}_{23}(t)$ und $\tilde{\omega}_{31}(t)$ unkorreliert, gibt der Vergleich von (9.7) mit (9.6)

$$\gamma_{21}^c = \gamma_{23}^c + \gamma_{31}^c.$$

Sind dagegen die Abweichungen $\tilde{\omega}_{23}(t)$ und $\tilde{\omega}_{31}(t)$ von den mittleren Übergangsfrequenzen vollständig zueinander proportional $\tilde{\omega}_{23}(t) = a \tilde{\omega}_{31}(t)$, bekommt man je nach dem Vorzeichen des Proportionalitätsfaktors a

$$\gamma_{21}^c = \gamma_{23}^c + \gamma_{31}^c \pm 2\sqrt{\gamma_{23}^c \gamma_{31}^c}.$$

Im folgenden wird gezeigt, daß γ_{21}^c im allgemeinen Fall zwischen den beiden hier durch die $\pm$ -Alternative markierten Werten liegt. Dazu werden zunächst alle Stöße, denen ein herausgegriffenes Atom ausgesetzt ist, durch den Index i gekennzeichnet. Die Stoßzeitpunkte mögen t_{0i} heißen. Jeder Stoß i trägt dann zu $\tilde{\omega}_{23}(t)$ einen Term $f_{23i}(t - t_{0i})$ und zu $\tilde{\omega}_{31}$ einen Term $f_{31i}(t - t_{0i})$ bei. Solange nun keine Korrelation zwischen den Frequenzverschiebungen verschiedener Stöße besteht, $\langle f_{23i}(t - t_{0i}) f_{23j}(t' - t_{0j}) \rangle = 0$ für $i \neq j$, kann man schreiben

$$\int_{-\infty}^{\infty} \langle \tilde{\omega}_{23}(t) \tilde{\omega}_{23}(t') \rangle dt' = \sum_i \left\langle f_{23i}(t - t_{0i}) \int dt' f_{23i}(t' - t_{0i}) \right\rangle.$$

Das Scharmittel wird nun durch ein Zeitmittel über die als genügend groß anzunehmende Mittelungszeit T ersetzt. Dann bekommt man

$$\begin{aligned} &= \frac{1}{T} \sum_i \int_0^T dt \int_{-\infty}^{\infty} dt' f_{23i}(t - t_{0i}) f_{23i}(t' - t_{0i}) \\ &= \frac{1}{T} \sum_i \underbrace{\left(\int_0^T dt f_{23i}(t - t_{0i}) \right)}_{I_{23i}} \underbrace{\left(\int_{-\infty}^{\infty} dt' f_{23i}(t' - t_{0i}) \right)}_{I_{23i}}. \end{aligned}$$

Da die Funktionen $f_{23i}(t - t_{0i})$ nur in einem sehr schmalen Bereich von Argumenten $|t - t_{0i}| \ll T$ von Null verschieden sind, kann man die Summe im letzten Ausdruck auf Indices i mit $0 \leq t_{0i} \leq T$ einschränken. Für eben diese Indices i haben auch die Integrale in den beiden großen runden Klammern praktisch den gleichen Wert. Analog zur eben gebrauchten Betrachtung bekommt man

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} \langle \tilde{\omega}_{31}(t) \tilde{\omega}_{31}(t') \rangle dt' &= \frac{1}{T} \sum_i I_{32i}^2 \\ \int_{-\infty}^{\infty} \langle \tilde{\omega}_{23}(t) \tilde{\omega}_{31}(t') \rangle dt' &= \frac{1}{T} \sum_i \underbrace{\left(\int_0^T dt f_{23i}(t - t_{0i}) \right)}_{I_{23i}} \underbrace{\left(\int_{-\infty}^{\infty} dt' f_{31i}(t' - t_{0i}) \right)}_{I_{31i}}. \end{aligned}$$

Die Beziehung (9.7) gibt dann

$$\int_{-\infty}^{\infty} \langle \tilde{\omega}_{21}(t) \tilde{\omega}_{21}(t') \rangle = \frac{1}{T} \sum_i I_{23i}^2 + \frac{1}{T} \sum I_{31i}^2 + \frac{2}{T} \sum_i I_{23i} I_{31i}. \quad (9.8)$$

Aufgrund der Cauchy-Schwarzschen Ungleichung gilt aber für die letzte Summe

$$\left| \sum_i I_{23i} I_{31i} \right| \leq \sqrt{\left(\sum_i I_{23i}^2 \right) \left(\sum_i I_{31i}^2 \right)}.$$

Ein Vergleich des Ausdrucks (9.8) mit (9.6) liefert dann die Beziehung

$$|\gamma_{21}^c - \gamma_{23}^c - \gamma_{31}^c| \leq 2\sqrt{\gamma_{23}^c \gamma_{31}^c}.$$

Man kann dies auch in symmetrischer Form schreiben

$$\gamma_{21}^{c^2} + \gamma_{23}^{c^2} + \gamma_{31}^{c^2} \leq 2\gamma_{21}^c \gamma_{23}^c + 2\gamma_{21}^c \gamma_{31}^c + 2\gamma_{23}^c \gamma_{31}^c.$$

Vertauscht man in (9.7) die Indices 1, 2 und 3 zyklisch miteinander und führt die Betrachtung analog durch, erhält man jedesmal wieder die gleiche, eben angegebene Relation. Die Beispiele im Abschnitt 9.1 sind so gewählt, daß sie dieser Ungleichung genügen, zusätzlich aber auch der zur Vereinfachung unserer Rechnungen gemachten Voraussetzung $\gamma_{13} = \gamma_{23}$.

9.3 Simulation stationärer Stokesfelder mit Zufallszahlen

Man kann nun in der Darstellung (9.4) die Operatoren $\hat{\sigma}_{31}(z', 0)$, $\hat{\sigma}_{32}(z', 0)$, $\hat{\Gamma}_{31}(z', \tau')$, $\hat{\Gamma}_{32}(z', \tau')$ und, wenn man kein oder nur ein gaußsches Feld in das System einkoppelt, auch das Anfangsfeld $\hat{\nu}_{23}(0, \tau')$ durch klassische komplexe gaußsche Zufallsgrößen ohne Operatorcharakter ersetzen. Die Korrelationsfunktion dieser klassischen Zufallsgrößen hat man einfach aus Formel (6.9), (6.12) zu entnehmen, wobei beispielsweise $\langle \Gamma_{31}^*(z, \tau) \Gamma_{31}(z', \tau') \rangle$ anstelle von $\langle \hat{\Gamma}_{13}(z, \tau) \hat{\Gamma}_{31}(z', \tau') \rangle$ tritt. Für das eingekoppelte Feld tritt $\langle \nu_{23}^*(z=0, \tau) \nu_{23}(z=0, \tau') \rangle$ an die Stelle der Operatorkorrelation $\langle \hat{\nu}_{23}^\dagger(z=0, \tau) \hat{\nu}_{23}(z=0, \tau') \rangle$; ein fehlendes Feld am Eingang des Verstärkers liefert den Beitrag Null.

Wegen der Gaußeigenschaft (6.13) für die Operatoren in (9.4) ändert die geschilderte Ersetzungsprozedur nichts am Erwartungswert normal geordneter Produkte

von Stokesfeldoperatoren $\hat{\nu}_{23}^\dagger$ und $\hat{\nu}_{23}$, die man für verschiedenste Kombinationen von z und τ auswerten kann. Für den in dieser Hinsicht ähnlich gelagerten Fall der Superfluoreszenz ist dies bereits diskutiert worden.^{69–71} Die genannten Erwartungswerte würden sich jedoch ändern, wenn man von der vorausgesetzten Normalordnung für die Feldoperatoren abginge. Ist die Verstärkung aber wiederum so hoch, daß das Stokesfeld makroskopisch groß wird, spielt dieser Unterschied keine Rolle mehr. Dies ist insbesondere bei Feldern am oberen Rand des linearen Verstärkungsbereichs der Fall, wie man sie als Ausgangspunkt für die Untersuchung der bei noch höheren Feldern einsetzenden Sättigungsphänomene benötigt. Solche Stokesfelder, bei denen man den Operatorcharakter von $\mathcal{E}_s$ nicht mehr zu bedenken braucht, sollen im folgenden für den stationären Fall ohne externe Signaleinkopplung behandelt werden.

Für die praktische Berechnung von simulierten Stokesfeldern aus Zufallszahlen ist es nicht sehr sinnvoll, vom Ausdruck (9.4) auszugehen, da man hier zwei zweidimensionale Felder von geeignet korrelierten Zufallszahlen $\Gamma_{31}(z', \tau')$ und $\Gamma_{32}(z', \tau')$ und anschließend einen ebenfalls zweidimensionalen Faltungsprozeß benötigt. Stattdessen transformiert man in den Fourierraum, wo man nur die Summe zweier Integrale über z' übrigbehält, genommen jeweils über das Produkt der fouriertransformierten Greensfunktion und der fouriertransformierten Langevinkraft. All die gaußverteilten Zufallsgrößen, die zu einer bestimmten Frequenz ω gehören, lassen sich dann zu einer neuen gaußschen Zufallsgröße mit anderer Varianz zusammenfassen. Diskretisiert man diese neuen Zufallsgrößen in geeigneter Weise, kann man daraus durch Fast Fourier Transformation das raumzeitliche Stokesfeld $\nu_{23}(z, \tau)$ konstruieren. Man erhält so die Darstellung

$$\nu_{23}(z, \tau) = \sqrt{\frac{\kappa}{NA} \frac{\Delta\omega}{2\pi}} \sum_{\omega_k} e^{-i\omega_k \tau} u_k \sqrt{\beta(\omega_k)} e^{z\alpha(\omega_k)}. \quad (9.9)$$

Die Summation erfolgt über die diskreten Frequenzen ω_k , die äquidistant im Abstand $\Delta\omega \ll \gamma_{ph}$ liegen. Die Größen $u_k = u_{1k} + i u_{2k}$ bezeichnen unkontrollierte gaußsche komplexe Zufallszahlen mit gleichverteilter Phase und $\langle u_k^* u_k \rangle = 1$. Mit einem Pseudozufallszahlengenerator von genügend großer Periodenlänge lassen sie sich auf einfache Weise gewinnen. Man kann sich überzeugen, daß das so repräsentierte Feld bei genügend kleiner Frequenzschrittweite $\Delta\omega$ und Summation über einen genügend großen Bereich von Frequenzen ω_k die gleichen statistischen Eigenschaften aufweist wie das ursprüngliche Feld (9.4).

10. Verstärkung stationärer Stokesfelder unter dem Einfluß von Sättigungserscheinungen

Ist das Stokesfeld im Laufe des Verstärkungsvorganges genügend weit angewachsen, verliert die in Abschnitt 6.2 gemachte lineare Näherung ihre Gültigkeit. Wie man leicht nachprüfen kann, ist das Stokesfeld bei den praktisch realisierten Anordnungen an diesem Punkt jedoch bereits so groß, daß man den Einfluß von Quantenfluktuationen auf seine weitere Entwicklung vernachlässigen kann. Die Propagation des Stokesfeldes in den nichtlinearen Bereich hinein kann daher mit den semiklassischen Gleichungen (2.6) untersucht werden. Dies geschieht in den im folgenden beschriebenen Computereperimenten.

Spontane Übergänge werden dabei nur zwischen den Niveaus $|1\rangle$, $|2\rangle$ und $|3\rangle$ angenommen. Für die Relaxationskonstanten des Systems werden die Werte $w_{21} = 0$, $w_{23} = 0.1\gamma_{ph}$, $w_{31} = 0.2\gamma_{ph}$, $\gamma_{12} = \gamma_{ph}$ eingesetzt. Diese Kombination garantiert am Anfang des Verstärkers eine positive Inversion, wie sie auch im Pulsbetrieb als hauptverantwortlich für die Verstärkung auftritt (siehe Abschnitt 3.4). Die Stärke des Pumpfeldes und seine Verstimmung werden als zeitlich konstant angenommen. Es werden drei Fälle betrachtet:

$$\begin{aligned} \text{a)} \quad & |\nu_{21}| = \gamma_{ph} \quad \Delta = 0 \\ \text{b)} \quad & |\nu_{21}| = 2\gamma_{ph} \quad \Delta = 0 \\ \text{c)} \quad & |\nu_{21}| = 2\gamma_{ph} \quad \Delta = 0.5\gamma_{ph} \end{aligned} \tag{10.1}$$

Der für die Quantenfluktuationen von $\nu_{23}(z, \tau)$ maßgebliche Faktor $\frac{\kappa}{NA\gamma_{ph}}$ wird entsprechend den in Abschnitt 3.2 angegebenen Daten mit 3.6×10^{-9} angesetzt. Als Maß für die Verstärkerlänge benutzen wir die dimensionslose Größe $\kappa z / \gamma_{ph}$. Bei den genannten Werten für die Parameter liegt der Leistungsverstärkungsfaktor $e^{2z \operatorname{Re}(\alpha)}$ für die am besten verstärkten Frequenzen am Punkt $\kappa z / \gamma_{ph} = 50$ in der Größenordnung 10^5 . Für den Fall fehlender äußerer Einkopplung, den wir hier betrachten, erhält man an diesem Punkt mit dem oben angegebenen Wert von $\frac{\kappa}{NA\gamma_{ph}}$ noch keine merklichen Sättigungserscheinungen. Für $\kappa z / \gamma_{ph} = 50$ kann daher jeweils ein nach Formel (9.9) konstruiertes Stokesfeld angesetzt werden. Die Werte des Stokesfeldes werden für 14000 aufeinanderfolgende äquidistante Zeitpunkte im Abstand $\gamma_{ph}\Delta\tau = 0.01$ abgespeichert. Für eine beliebige effektive Verstärkerlänge $\kappa z / \gamma_{ph} \geq 50$, für die das Stokesfeld in dieser Weise abgespeichert ist, können nun die

semiklassischen Dichtematrixgleichungen (2.6) mit den Anfangswerten (3.2) mit einem Adams-Verfahren⁹⁸ über die Zeit hinweg numerisch integriert werden. Dies liefert entsprechend der Propagationsgleichung (3.1a) die räumlichen Ableitungen des Stokesfeldes an den 14000 Punkten. Zur Integration über z wird dann entsprechend einem Vorschlag von Guzman⁵⁷ ein modifiziertes Prädiktor-Korrektor-Differentialgleichungslösungsverfahren benutzt; als Anfangswerte dienen die oben erwähnten mit Hilfe von Zufallszahlen erzeugten Werte bei $\kappa z/\gamma_{ph} = 50$. Einen Ausschnitt aus den erhaltenen Feldern zeigt Abb. 23.

Da die zur Integration der semiklassischen Dichtematrixgleichungen (2.6) benutzten Anfangswerte (3.2) für $\tau = 0$ keinen Stokesfeldeinfluß enthalten, treten im Bereich kleiner τ Übergangsphänomene auf, bis unter Einschluß des Stokesfeldes ein stationärer Zustand erreicht ist. Es zeigt sich, daß die Verwendung eines stationären Stokesfeldes für $\kappa z/\gamma_{ph} = 50$ ein sehr früh einsetzendes Stokesfeld auch für größere $\kappa z/\gamma_{ph}$ gewährleistet, so daß die Übergangsphänomene auf den Bereich $0 \leq \gamma_{ph}\tau \leq 10$ beschränkt bleiben. Für die folgenden Untersuchungen zum stationären Zustand werden zur Sicherheit jeweils nur die letzten 12000 Zeitpunkte τ_k , $k = 2001$ bis 14000 entsprechend $20 \leq \gamma_{ph}\tau_k < 140$ ausgewertet.

Für jede Kombination der gewählten Parameter $|\nu_{21}|$, Δ werden mehrere Läufe des Computerprogramms gerechnet, wobei zur Simulation des Stokesfeldes bei $\kappa z/\gamma_{ph} = 50$ jedes Mal eine neue Folge von Zufallszahlen herangezogen wird. Zur Ermittlung der interessierenden statistischen Verteilungen und Erwartungswerte werden dann die Ergebnisse aller Läufe benutzt. Da der für jeden einzelnen Lauf ausgewertete Zeitraum bereits ein Vielfaches der Relaxationszeit und dementsprechend viele quasi unabhängig aufeinander folgende Stokesfeldvarianten umfaßt, geben einige wenige Läufe bereits recht zuverlässige Ergebnisse. Für $|\nu_{21}| = \gamma_{ph}$, $\Delta = 0$ sind es 5 Läufe, für $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\Delta = 0$ drei Läufe, die in den folgenden Abschnitten ausgewertet werden. Für die Kombination $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\Delta = 0.5\gamma_{ph}$ werden 6 Läufe bis $\kappa z/\gamma_{ph} = 1024$ und drei davon weiter bis $\kappa z/\gamma_{ph} = 8192$ geführt.

Daneben gibt es Kontrollläufe mit dem gleichen Anfangsfeld, aber halbiertem Schrittweite für die zeitliche und räumliche Integration der Differentialgleichungen. Der Unterschied der so erhaltenen Felder gegenüber den regulären Läufen liegt im interessierenden Bereich $\gamma_{ph}\tau \geq 20$ durchweg unter 2% der mittleren Amplitude. Dies gilt auch in der Umgebung der in Abb. 23 wiedergegebenen Spikes. Für die Fourierspektren ergeben sich gleichfalls keine größeren Differenzen.

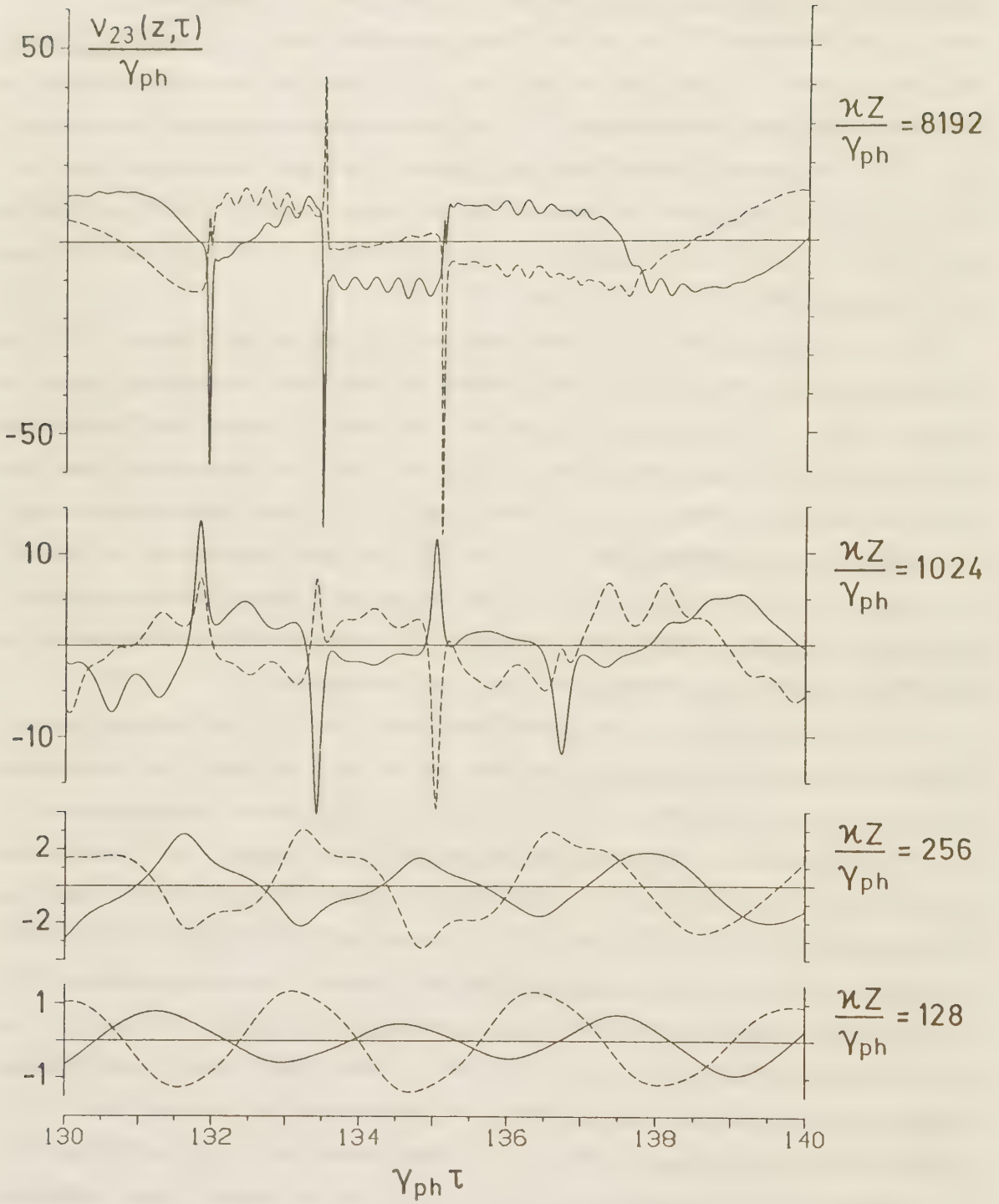


Abb. 23: Entwicklung des Stokesfeldes (Ausschnitt) in einer Simulationsrechnung für $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\Delta = 0$. Die durchgezogenen Linien geben der Realteil von $\nu_{23}(z, \tau)/\gamma_{ph}$ wieder, die gestrichelten Linien den Imaginärteil.

Im übrigen beschreiben wir in den folgenden Abschnitten nur Effekte mit derart drastischer Wirkung, daß sie bei jedem einzelnen Lauf beobachtet werden können. Bei Auswertung mehrerer Läufe treten sie lediglich deutlicher hervor, da sich dann außer der Zeitmittelung auch ein gewisses Maß an Ensemblemittelung ergibt.

10.1 Die Erwartungswerte der atomaren Operatoren $\hat{\sigma}_{11}$, $\hat{\sigma}_{22}$, $\hat{\sigma}_{33}$, $\hat{\sigma}_{21}$ für den stationären Zustand in Abhängigkeit von der dimensionslosen Verstärkerlänge $\kappa z/\gamma_{ph}$

Um eine Schätzung für den Erwartungswert der atomaren Operatoren $\hat{\sigma}_{11}$, $\hat{\sigma}_{22}$, $\hat{\sigma}_{33}$ und $\hat{\sigma}_{21}$ zu erhalten, mittelt man die bei der Lösung der Differentialgleichungen für ein festes $\kappa z/\gamma_{ph}$ gefundenen Werte für die Dichtematrixelemente ρ_{11} , ρ_{22} , ρ_{33} und ρ_{12} über die letzten 12000 Punkte τ_k . Anschließend mittelt man über die Resultate verschiedener Läufe. Die erhaltenen Werte werden dann in Abhängigkeit von der dimensionslosen Verstärkerlänge $\kappa z/\gamma_{ph}$ graphisch dargestellt. Für die unter (10.1) genannten Werte von $|\nu_{21}|$ und Δ ähneln sich die erhaltenen Kurven; einer der Plots ist in Abb. 24 wiedergegeben.

10.2 Der Erwartungswert für die Intensität der Stokesstrahlung im stationären Fall in Abhängigkeit von $\kappa z/\gamma_{ph}$

Wie früher in (8.4) und (8.5) läßt sich auch hier der Intensitäts-Erwartungswert durch die dimensionslose Größe $\langle |\nu_{23}|^2 \rangle / \gamma_{ph}^2$ ausdrücken:

$$\langle I \rangle = 2\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{\hbar \gamma_{ph}}{\mu_{23}} \right)^2 \frac{\langle |\nu_{23}|^2 \rangle}{\gamma_{ph}^2} = \frac{\hbar \nu_s}{A} \gamma_{ph} \left(\frac{\kappa}{NA \gamma_{ph}} \right)^{-1} \frac{\langle |\nu_{23}|^2 \rangle}{\gamma_{ph}^2}. \quad (10.2)$$

Einen Schätzwert für $\langle |\nu_{23}|^2 \rangle$ erhält man durch Mittelung der Werte $|\nu_{23}(z, \tau_k)|^2$ über die letzten 12000 Zeitpunkte τ_k . Der Verlauf von $\langle |\nu_{23}|^2 \rangle / \gamma_{ph}^2$ in Abhängigkeit von $\kappa z/\gamma_{ph}$ ist für $|\nu_{21}| = \gamma_{ph}$, $\Delta = 0$ in Abb. 25 dargestellt. Die Kurven für die anderen behandelten Parameterkombinationen sehen qualitativ ähnlich aus; für $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\Delta = 0$ liegt der Endwert für $\kappa z/\gamma_{ph} = 8192$ bei $\langle |\nu_{23}|^2 \rangle / \gamma_{ph}^2 = 184.3$ anstelle von 108.6 wie in Abb. 25.

Da die Größe ν_{23} als Kopplungsfaktor in die Gleichungen (2.6) eingeht, ist es zweckmäßig, im Bereich der Sättigung das Verhältnis $\langle |\nu_{23}|^2 \rangle / \gamma_{ph}^2$ als charakteristische Kenngröße für die Stokesintensität zu verwenden. Im linearen Bereich hatten

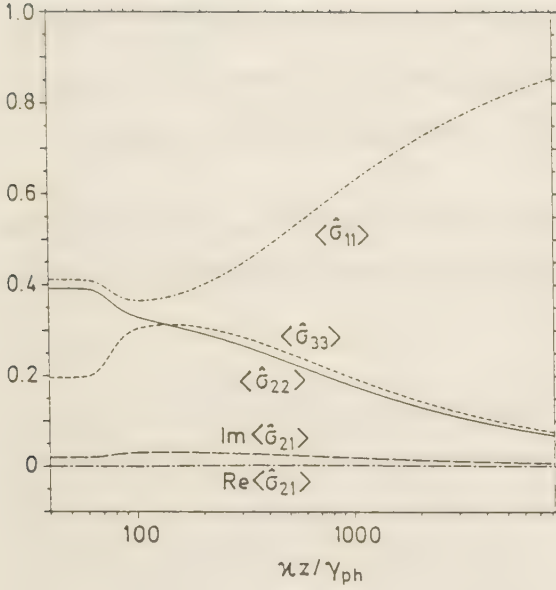


Abb. 24: Die Erwartungswerte der atomaren Kontinuumsoperatoren $\langle \hat{\sigma}_{11} \rangle$, $\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle$, $\langle \hat{\sigma}_{33} \rangle$, $\langle \hat{\sigma}_{21} \rangle$ im stationären Zustand. Auswertung von 5 Computerläufen mit $|\nu_{21}| = \gamma_{ph}$, $\Delta = 0$.

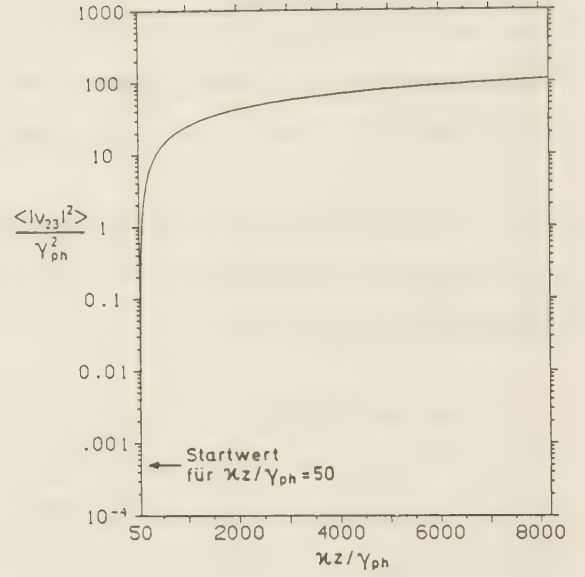


Abb. 25: Anstieg der stationären Stokesintensität in Abhängigkeit von der effektiven Verstärkerlänge $\kappa z / \gamma_{ph}$. Auswertung von 5 Computerläufen mit $|\nu_{21}| = \gamma_{ph}$, $\Delta = 0$.

wir demgegenüber die Photonenzahl, die sich als Produkt von $\langle \hat{\sigma}_{22} \rangle / w$ mit der geschweiften Klammer in (8.5) ergibt, als Kenngröße für die Stokesintensität benutzt. Die beiden Kenngrößen unterscheiden sich um den Faktor $\frac{\kappa}{NA\gamma_{ph}} = 3.6 \times 10^{-9}$, der die unterschiedlichen Größenordnungen von spontan entstehenden und von sättigenden Feldern deutlich macht.

10.3 Die spektrale Leistungsdichte des Stokesfeldes im stationären Fall

Entsprechend Formel (8.10) und (8.11) bildet man zunächst die Fouriertransformierte der Stokesfeldwerte an den letzten 12000 Zeitpunkte τ_k

$$\{\nu_{23}\}_T(z, \omega) = \Delta\tau \sum_{k=2001}^{14000} e^{i\omega\tau_k} \nu_{23}(z, \tau_k)$$

und erhält dann die spektrale Leistungsdichte in der Form

$$\begin{aligned} G(z, \omega) &= 2\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{\hbar}{\mu_{23}} \right)^2 \gamma_{ph} \frac{|\{\nu_{23}\}_T(z, \omega)|^2}{120} \\ &= \frac{\hbar\nu_s}{A} \left(\frac{\kappa}{NA\gamma_{ph}} \right)^{-1} \frac{|\{\nu_{23}\}_T(z, \omega)|^2}{120}. \end{aligned} \quad (10.3)$$

In Abb. 26 ist nun der Wert des dimensionslosen Bruchs $|\{\nu_{23}\}_T(z, \omega)|^2/120$ dargestellt. Wie analog im vorigen Abschnitt beschrieben, repräsentiert diese Kenngröße das 3.6×10^{-9} fache der in Abb. 18 für den linearen Bereich dargestellten Werte.

Der Erwartungswert der Schätzung (10.3) unterscheidet sich allerdings von der wirklichen spektralen Dichte im stationären Zustand durch eine Faltung mit dem Absolutquadrat der Fouriertransformierten der Fensterfunktion

$$f(\tau) = \begin{cases} 1 & \text{für } 20 \leq \gamma_{ph}\tau < 140 \\ 0 & \text{sonst.} \end{cases} \quad (10.4)$$

Dies bringt eine gewisse Verbreiterung vor allem der Flanken des von uns ermittelten Spektrums mit sich. Um einen problemlosen Vergleich mit der in linearer Näherung berechneten spektralen Leistungsdichte (9.5) zu ermöglichen, wurde die letztere mit dem Absolutquadrat der Fouriertransformierten der eben genannten Fensterfunktion gefaltet und das Resultat für $\kappa z/\gamma_{ph} = 64$ als gestrichelte Linie in Abb. 26 a–c eingezeichnet. Da der Verstärkungsprozeß in diesem Bereich noch hinreichend linear ist, schwankt die aus den Simulationsexperimenten bestimmte durchgezogene Linie für $\kappa z/\gamma_{ph} = 64$ um diese gestrichelte theoretische Linie. In Kapitel 11 soll geprüft werden, ob sich anhand vereinfachender Modellvorstellungen auch im nicht-linearen Verstärkungsbereich entsprechende theoretische Kurven finden lassen, die die rechenintensiven Simulationsexperimente ersetzen könnten.

Nun zu den auf den Bildern erkennbaren Vorgängen. Zunächst führt der Einfluß der Sättigung dazu, daß die spektrale Dichte mit wachsender Verstärkerlänge schließlich immer langsamer anwächst. Sodann treten aufgrund der Nichtlinearität des Verstärkungsvorganges zusätzliche Frequenzen bei ganzzahligen Vielfachen der Differenzfrequenz zwischen den beiden Starklinien auf. Sie sind in Abb. 26d durch Pfeile markiert. Für sehr große Verstärkerlängen beginnt sich die Mitte zwischen den beiden Linien aufzufüllen und es erscheint schließlich im wesentlichen nur noch eine einzige, allerdings recht breite Linie. Damit verschwinden auch die diskreten Differenzfrequenzen und machen einem kontinuierlichen Untergrund Platz. Dieser

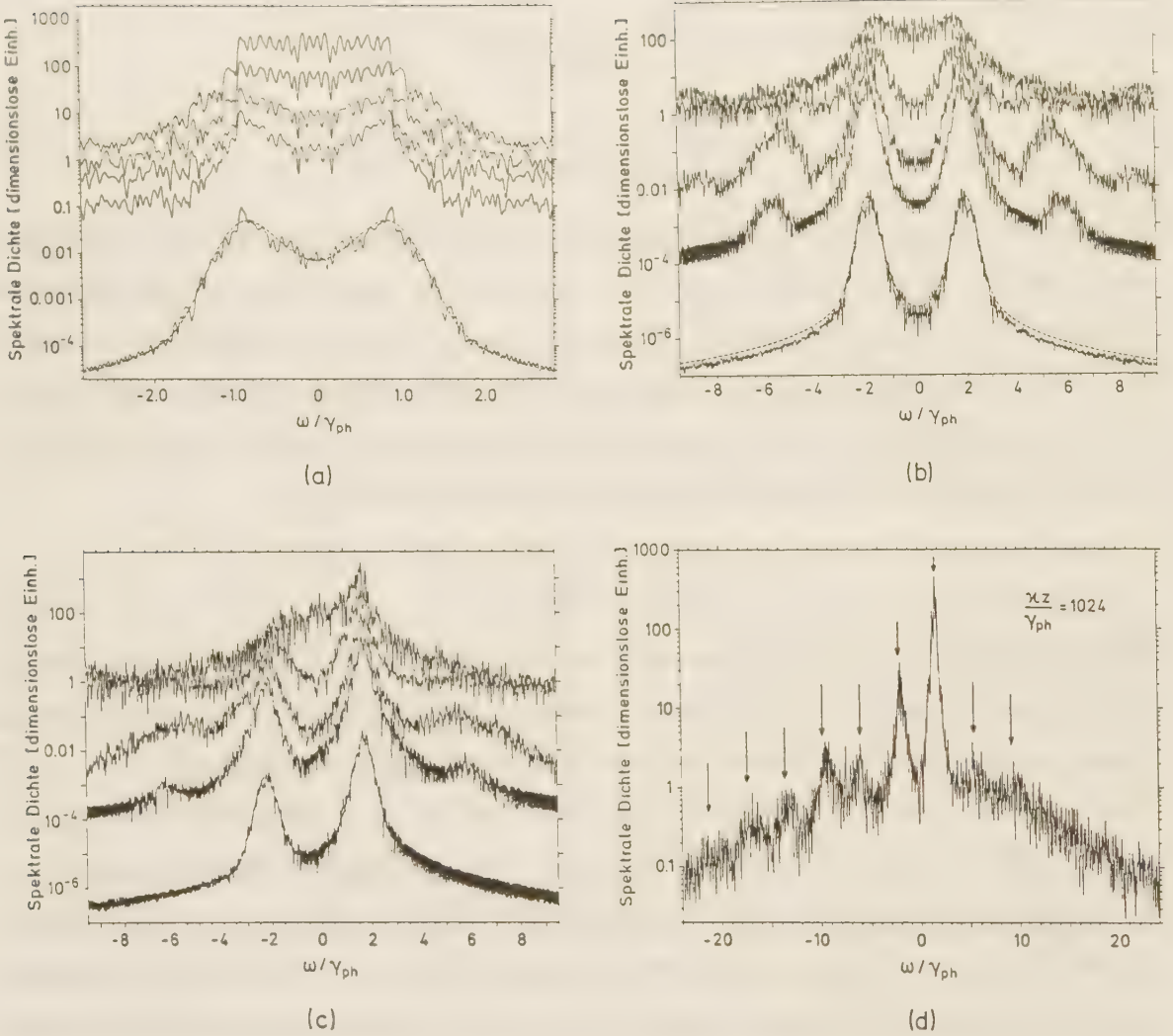


Abb. 26: Spektrale Leistungsdichte im stationären Fall, Einheiten wie im Anschluß an Formel (10.3) beschrieben. Die durchgezogenen Linien in Teilbild a–c entsprechen — von unten nach oben — $\kappa z / \gamma_{ph}$ -Werten von 64, 128, 256, 1024 und 8192. Die gestrichelte Linie gibt die spektrale Dichte (9.5) für $\kappa z / \gamma_{ph} = 64$ wieder, gefaltet mit dem Absolutquadrat der Fouriertransformierten der Fensterfunktion (10.4). Die Parameter haben die Werte: (a) $|\nu_{21}| = \gamma_{ph}$, $\Delta = 0$ (b) $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\Delta = 0$ (c) $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\Delta = 0.5\gamma_{ph}$. (d) Spektrale Dichte wie in Teilbild c, jedoch nur für den einen Wert $\kappa z / \gamma_{ph} = 1024$. Die ganzzahligen Vielfachen der Differenzfrequenz zwischen den beiden Starklinien sind durch Pfeile markiert.

Untergrund stammt im wesentlichen von den auch in Abb. 23 sichtbaren schnellen Oszillationen und von den steilen Spitzen im Feldverlauf.

10.4 Intensitäts- und Energieverteilungen im nichtlinearen Bereich

Im Bereich linearer Stokesverstärkung weisen bei fehlender äußerer Einkoppelung die zu einer definierten Zeit τ am Verstärkerausgang auftretenden Intensitäten $I(\tau)$ eine exponentiell abfallende Wahrscheinlichkeitsverteilung (8.18) auf. Die dafür in Abschnitt 8.5 gegebene Begründung gilt sowohl für stationäre als auch für instationäre Fälle; sie gilt in gleicher Form auch für Superfluoreszenz und nichtresonante Ramanstreuung. Für die in einem endlichen Zeitraum $\Delta\tau$ abgestrahlten Energien erhält man unter diesen Bedingungen im allgemeinen andere, stärker um den Mittelwert konzentrierte Verteilungen, wie gleichfalls in Abschnitt 8.5 diskutiert.

Für die Felder, die bei nichtlinearen Verstärkungsprozessen entstehen, sind Intensitäts- und Energieverteilungen nur für wenige Fälle bekannt. So wurden für den Fall superfluoreszenter Pulse Mittelwerte und Streuungen von Intensitätswerten bestimmt.⁶⁹ Auch die verwandte Frage nach der Verteilung der Verzögerungszeiten, die vom Augenblick der Präparation des Systems an bis zum Maximum des superfluoreszenten Pulses verstreichen, war Gegenstand dieser Untersuchungen. Eine andere theoretische⁹⁹ und eine experimentelle Arbeit¹⁰⁰ betrifft den Fall der nichtresonanten Ramanstreuung. Veränderungen der Besetzungszahlen der atomaren Niveaus spielen hier keine Rolle und der bei fastresonanter Anregung wichtigste Sättigungsmechanismus, nämlich der Abbau der atomaren Inversion durch das anwachsende Stokesfeld, entfällt. Daher tritt als nichtlinearer Prozeß die Entleerung des Pumpfeldes durch die Umwandlung in Stokeslicht in den Vordergrund. In den genannten beiden Arbeiten werden nicht die momentanen Intensitäten $I(\tau)$ auf ihre Wahrscheinlichkeitsverteilung hin untersucht, sondern stattdessen die gesamte Stokesenergie, die auf einen kurzen Pumpimpuls hin im aktiven Medium freigesetzt wird. Im Vergleich zu den Verhältnissen bei kleinen Stokesfeldern zeigt sich hier unter der Wirkung des nichtlinearen Prozesses ein Rückgang der relativen Streuung für die Stokesenergie, was einer Stabilisierung um den Mittelwert herum entspricht. In all den genannten Arbeiten werden nur superfluoreszente bzw. Ramanpulse betrachtet, die sich in Zeiträumen klein gegen die inverse Relaxationszeit des Mediums entwickeln. In der Notation von Abschnitt 8.5 entspricht dies dem Fall a). Für die fastresonante Raman- bzw. Hyper-Raman-Streuung, die Gegenstand unserer Arbeit ist, soll demgegenüber im folgenden der entgegengesetzte Fall b) ausgewertet werden, der einem stationären Zustand entspricht. Ausgangspunkt sind die Felder

aus der zu Beginn dieses Kapitels beschriebenen Simulationemethode. Zunächst interessiert die Verteilung der momentanen Intensitätswerte

$$I_{kl} = 2\sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{\hbar}{\mu_{23}} \right)^2 \left\{ |\nu_{23}(z, \tau_k)|^2 \right\}_{\text{Lauf } l} \quad (10.5)$$

wobei der Index k die letzten 12000 Zeitpunkte τ_k jedes Laufes und l die ausgewerteten Läufe des Programms abzählt. Entsprechend einem in¹⁰⁰ zitierten Verfahren¹⁰¹ wird für die Wahrscheinlichkeitsdichte $p(I)$ die Schätzung

$$p(I) = \frac{\langle I \rangle}{20 \Delta I}$$

benutzt, wobei ΔI die Breite jenes symmetrisch um den Punkt I herum gelegenen Intervalls bezeichnet, das $\frac{1}{20}$ aller Werte I_{kl} enthält. Im Zähler wird der Mittelwert aller I_{kl} eingesetzt. Diese Methode gibt in allen Teilen von Abb. 27 einigermaßen brauchbare Resultate. Die hier nicht im einzelnen wiedergegebenen Intensitätsverteilungen für $|\nu_{21}| = 2$, $\Delta = 0.5$ ähneln im wesentlichen denen in Abb. 27b. Auf den Diagrammen sieht man zunächst den Übergang von der angenähert exponentiell abfallenden Intensitätsverteilung im linearen Bereich zur ziemlich scharf um den Mittelwert konzentrierten Verteilung im Bereich hoher Sättigung. Der Einfluß der bereits anhand von Abb. 23 diskutierten Spikes modifiziert jedoch dieses Bild. Für $|\nu_{21}| = 2$, $\Delta = 0$, $\kappa z / \gamma_{ph} = 8192$ liegen 1.2% der Intensitätswerte oberhalb von $2\langle I \rangle$; diese Werte, von denen einige bis zum über 50 fachen des Mittelwerts reichen, steuern in ihrer Gesamtheit immerhin 9.4% zur mittleren Intensität bei. Für $|\nu_{21}| = 1$, $\Delta = 0$, $\kappa z / \gamma_{ph} = 8192$ haben demgegenüber nur 0.25% der momentanen Intensitäten Werte $I_{kl} > 2\langle I \rangle$; sie steuern 1.5% zur mittleren Intensität bei. Der Einfluß der Spikes sorgt vor allem für $|\nu_{21}| = 2$, wo man offenbar breitere Verteilungen erhält als für $|\nu_{21}| = 1$, dafür, daß die relative statistische Streuung der Intensitätswerte keineswegs in jedem Fall mit wachsendem $\kappa z / \gamma_{ph}$ abnimmt. Wir kommen darauf im folgenden im Rahmen einer erweiterten Fragestellung zurück.

Jetzt sollen statt der momentanen Intensitäten $I(\tau)$ die Energiemengen W betrachtet werden, die pro Flächeneinheit den Punkt z des Verstärkers innerhalb einer festgelegten Zeitspanne T passieren. Für die statistische Auswertung summieren wir

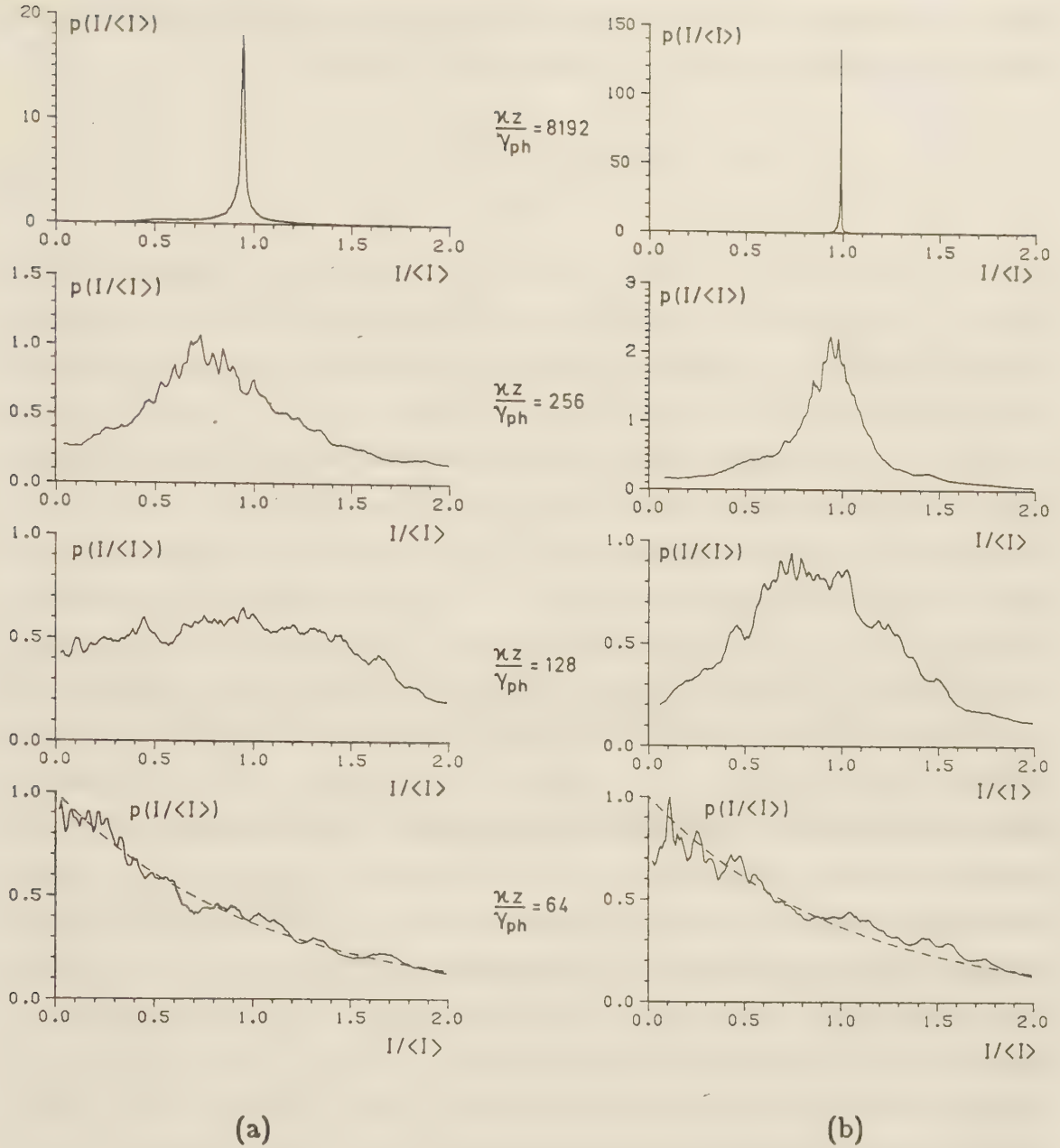


Abb. 27: Wahrscheinlichkeitsverteilung verschiedener Intensitätswerte für die in der Mitte des Bildes vermerkten Werte von $\kappa z / \gamma_{ph}$. Bei $\kappa z / \gamma_{ph} = 64$ ist zum Vergleich gestrichelt die entsprechende Exponentialverteilung (8.18) eingezeichnet. Linke Bildreihe (a) für $|\nu_{21}| = \gamma_{ph}$, $\Delta = 0$; rechte Bildreihe (b) für $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\Delta = 0$.

jeweils eine passende Anzahl von aufeinanderfolgenden Intensitätswerten (10.5) aus unseren Simulationsrechnungen und bilden so die Größen

$$W_{jl} = \Delta\tau \sum_{k=j+1}^{j+T/\Delta\tau} I_{kl}$$

für $j = 0, T/\Delta\tau, 2T/\Delta\tau, 3T/\Delta\tau, \dots$. Für die Gesamtheit aller möglichen Kombinationen j, l berechnet man anschließend das mittlere Quadrat der Abweichung der W_{jl} vom Mittelwert. Zur besseren Ausnutzung der in den I_{kl} enthaltenen Information wiederholt man die Prozedur für andere Folgen $j = j_0, j_0 + T/\Delta\tau, j_0 + 2T/\Delta\tau, j_0 + 3T/\Delta\tau, \dots$, mit zwischen Null und $T/\Delta\tau$ gleichmäßig verteilten Anfangspunkten j_0 , mittelt die Resultate und erhält so einen Schätzwert für $(\Delta W)^2$, das Streuquadrat für die innerhalb der Zeitabschnitte T erhaltenen Energiemengen. Für die beiden Parameterkombinationen mit $|\nu_{21}| = 2$ sind die entsprechenden relativen Streuungen $\Delta W/\langle W \rangle$ in Abb. 28 wiedergegeben. Die Schnittpunkte der dargestellten Kurven mit der Ordinatenachse entsprechen dabei der relativen Streuung der Intensitätswerte (10.5). Man sieht, daß diese Streuung nach anfänglichem Rückgang schließlich mit wachsendem $\kappa z/\gamma_{ph}$ aufgrund der sich immer stärker ausbildenden Spikes wieder zunimmt. Allerdings sieht man auch, daß die Streuung der Energiewerte im Bereich der Sättigung sehr viel stärker mit wachsendem $\gamma_{ph}T$ abfällt als im linearen Bereich, wohl weil bei größeren $\kappa z/\gamma_{ph}$ ein beträchtlicher Anteil der gesamten Energiefluktuationen auf sehr kurzdauernde Spikes entfällt. Die für den Fall nichtresonanter Ramanstreuung von Lewenstein⁹⁹ im Bereich der Sättigung konstatierte Stabilisierung der Stokesenergie gilt offenbar in unserem Fall nur in bestimmten Bereichen von Integrationszeiten $\gamma_{ph}T$. Zum Schluß sei noch auf die in Abb. 28 deutlich erkennbaren Oszillationen hingewiesen, deren Ursprung bereits in Abschnitt 8.5 für den linearen Bereich erörtert wurde.

Eine interessante weiterführende Fragestellung betrifft die Natur der Instabilität in den semiklassischen Gleichungen (2.6), die aus langsam variierenden gaußschen Feldern die beobachteten wild spikenden Ausgangssignale macht. Sind doch bei entsprechenden Untersuchungen für die semiklassischen Ausbreitungsgleichungen der nichtresonanten Ramanstreuung unter bestimmten, allerdings sehr speziellen Bedingungen Hinweise auf Chaos¹⁰² und Solitonen^{103–106} gefunden worden.

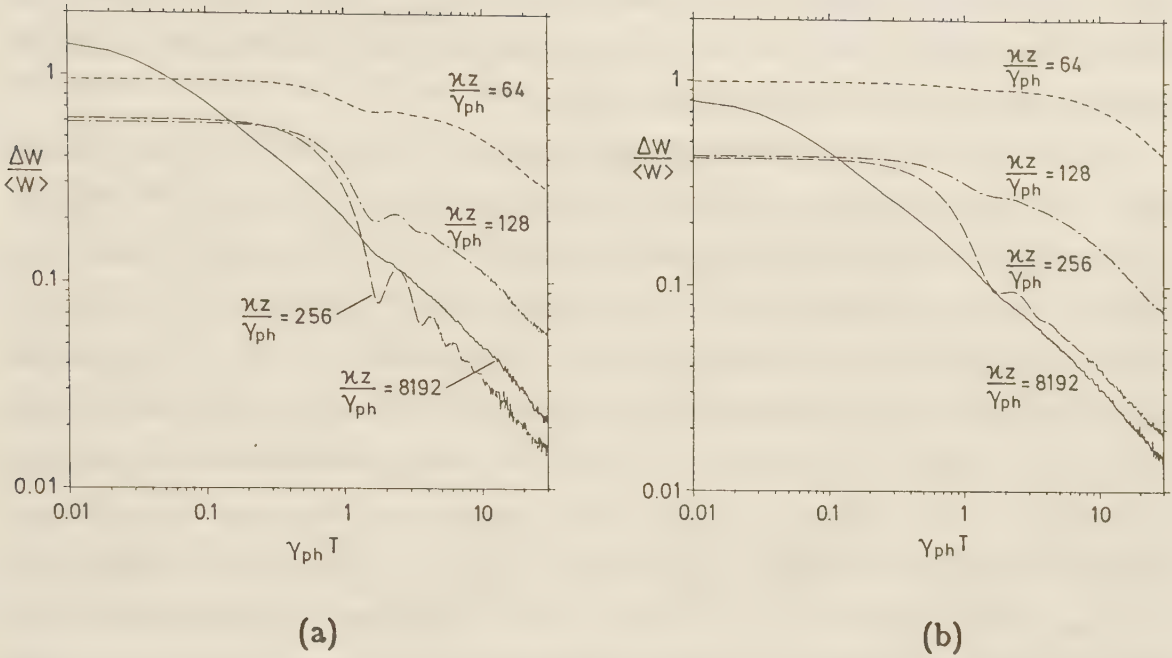


Abb. 28: Relative Streuung der Stokesenergiewerte für verschiedene, an den Kurven vermerkte Werte von $\kappa z / \gamma_{ph}$ bei festem Verhältnis $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$. (a) $\Delta = 0$, (b) $\Delta = 0.5$.

11. Vereinfachte Modelle für die nichtlineare Stokesverstärkung

11.1 Benutzte Näherung

Die im vorangegangenen Kapitel beschriebenen Simulationsmethoden liefern zwar innerhalb der ihnen zugrundeliegenden Modellannahmen einigermaßen zuverlässige Ergebnisse, weisen aber auch Nachteile auf. Zum einen ist der Rechenzeitbedarf sehr hoch, zum anderen verspermt die dabei nötige komplizierte Verknüpfung sehr großer Datenmengen anschaulichen Vorstellungen über das, was im verstärkenden Medium wirklich physikalisch geschieht, sehr leicht den Weg.

Um ein solches physikalisches Verständnis zu gewinnen, könnte man versuchen, das halbklassische Gleichungssystem (2.6) im Fourierraum zu behandeln und hätte dann die Wechselwirkung verschiedener Frequenzkomponenten des Stokesfeldes mit dem nichtlinearen Medium im einzelnen zu studieren. Kompliziert wird dies durch die kohärenten Effekte, die wir für einen einfachen Spezialfall in Kapitel 4 behandelt haben. Für unsere reale Problemstellung mit vielen zur Sättigung beitragenden

Stokesfrequenzen verspricht eine korrekte Behandlung dieser Effekte wieder ähnlich unübersichtlich zu werden wie die im vorigen Kapitel beschriebene Lösung der Dichtematrixgleichungen als Funktion der Zeit.

Die Behandlung der Dichtematrixgleichungen im Fourierraum verspricht jedoch recht einfache und übersichtliche Modellvorstellungen für die wirklichen Verhältnisse, wenn man die kohärenten Effekte vernachlässigt. Als Treibterme der Verstärkung betrachtet man zu diesem Zweck — wie in der linearen Näherung — nur diejenigen Dichtematrix-Frequenzkomponenten, deren Frequenz allein durch die Frequenz des monochromatischen Pumpfeldes bestimmt wird und die auch bei verschwindendem Stokesfeld im allgemeinen Werte $\neq 0$ haben. Für das halbklassische Gleichungssystem (2.6) mit drei Niveaus $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$ sind das die zur Frequenz Null gehörigen Fourierkomponenten der Besetzungszahlen ρ_{11} , ρ_{22} , ρ_{33} sowie der atomaren Kohärenz ρ_{12} . Mathematisch drückt sich die zur Vernachlässigung der kohärenten Effekte führende Näherung darin aus, daß man anstelle der Größen ρ_{11} , ρ_{22} , ρ_{33} , ρ_{12} nur deren zur Frequenz Null gehörige Fourierkomponenten $\rho_{11}^{(0)}$, $\rho_{22}^{(0)}$, $\rho_{33}^{(0)}$, $\rho_{12}^{(0)}$ in die Gleichungen (2.6e,f) einsetzt. Setzt man die Bezugsfrequenz δ wie in Abschnitt 6.4 gleich Null und schreibt das Stokesfeld in der Form

$$\nu_{23}(z, \tau) = \sum_{\omega_k} \nu_{23}^{(\omega_k)}(z) e^{-i\omega_k \tau}, \quad (11.1)$$

kann man dann das von diesen beiden Gleichungen gebildete System leicht lösen. Man erhält im eingeschwungenen Zustand

$$\rho_{23}(z, \tau) = \sum_{\omega_k} i\nu_{23}^{(\omega_k)}(z) \frac{(\gamma_{ph} - i\Delta - i\omega_k)(\rho_{22}^{(0)} - \rho_{33}^{(0)}) - i\nu_{21}\rho_{12}^{(0)}}{(\gamma_{ph} - i\omega_k)(\gamma_{ph} - i\Delta - i\omega_k) + |\nu_{21}|^2} e^{-i\omega_k \tau} \quad (11.2)$$

sowie einen ähnlich gebauten, gleichfalls in $(\rho_{22}^{(0)} - \rho_{33}^{(0)})$ und $\rho_{12}^{(0)}$ linearen Ausdruck für $\rho_{13}(z, \tau)$. Die erhaltenen Ausdrücke für $\rho_{23}(z, \tau)$ und $\rho_{13}(z, \tau)$ setzt man nun auf der rechten Seite der Gleichungen (2.6a–d) ein. Nimmt man von beiden Seiten dieser ersten vier Gleichungen nur die zur Frequenz Null gehörigen Fourierkomponenten und eliminiert die Größe $\rho_{11}^{(0)}$ mit Hilfe der Relation $\rho_{11}^{(0)} = 1 - \rho_{22}^{(0)} - \rho_{33}^{(0)}$, erhält man schließlich ein reelles 4×4 -Gleichungssystem für die verbleibenden Unbekannten $\rho_{22}^{(0)}$, $\rho_{33}^{(0)}$, $\text{Re}[\rho_{12}^{(0)}]$ und $\text{Im}[\rho_{12}^{(0)}]$. Die Koeffizienten dieses Gleichungssystems haben die Form

$$e + \sum_{\omega_k} f(\omega_k) |\nu_{23}^{(\omega_k)}|^2.$$

Der erste Term e ist jeweils durch die vorgegebenen Systemparameter w_{21} , w_{23} , w_{31} , γ_{12} , γ_{13} , γ_{23} , Δ und $|\nu_{21}|$ bestimmt. Der zweite Term mit den ebenfalls durch die Systemparameter und außerdem durch die Frequenz der Stokeskomponenten bestimmten Vorfaktoren $f(\omega_k)$ führt Sättigungsphänomene in das Modell ein und unterscheidet es von einem rein linearen Ansatz. Ist nun für eine bestimmte Koordinate z ein Satz von Fourieramplituden-Absolutquadraten $|\nu_{23}^{(\omega_k)}|^2$ bekannt, können mit Hilfe des genannten algebraischen 4×4 -Gleichungssystems die Größen $\rho_{22}^{(0)}$, $\rho_{33}^{(0)}$, $\text{Re}[\rho_{12}^{(0)}]$ und $\text{Im}[\rho_{12}^{(0)}]$ berechnet werden. Setzt man den Ausdruck (11.2) in die Feldpropagationsgleichung (11.2) ein, erhält man dann die räumlichen Ableitungen der Fourieramplituden-Absolutquadrate

$$\frac{d}{dz} |\nu_{23}^{(\omega_k)}|^2 = \left[\kappa \frac{(\gamma_{ph} - i\Delta - i\omega_k)(\rho_{22}^{(0)} - \rho_{33}^{(0)}) - i\nu_{21}\rho_{12}^{(0)}}{(\gamma_{ph} - i\omega_k)(\gamma_{ph} - i\Delta - i\omega_k) + |\nu_{21}|^2} + c.c. \right] |\nu_{23}^{(\omega_k)}|^2 \quad (11.3)$$

Auf diese Weise hat man ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen für die Absolutquadrate der Fourieramplituden gewonnen. Man braucht nun noch die Anfangswerte etwa bei $z = 0$ vorzugeben, um es numerisch integrieren zu können. Zwei einigermaßen naheliegende Möglichkeiten für die Wahl der Anfangswerte werden im folgenden ausprobiert und die so erhaltenen Rechenergebnisse mit denen des Simulationsverfahrens in Kapitel 10 verglichen.

11.2 Rechnung für ein monochromatisches Stokesfeld

Wir folgen zunächst dem implizit in früheren Arbeiten von Louisell und Meystre²⁸ sowie Guzman⁵⁷ enthaltenen Ansatz. Dabei setzt man bei dem Feld (11.1) am Eingang des Verstärkers nur eine Fourierkomponente mit der Amplitude $\nu_{23}^{(\omega_0)}(z=0)$ ungleich Null und integriert mit dieser Anfangsbedingung die Gleichungen (2.6) und (11.3) über die z -Koordinate bis zum interessierenden Punkt. Für den hier ins Auge gefaßten Fall fehlender realer äußerer Einkopplung von Stokeslicht in den Verstärker soll die fiktive Eingangsamplitude $\nu_{23}^{(\omega_0)}(z=0)$ die in den semiklassischen Gleichungen fehlenden Einflüsse spontaner Emissionsprozesse simulieren. Es erscheint vernünftig, die Intensität des fiktiven Eingangssignals in der Größenordnung des Faktors zu wählen, der in der spektralen Dichte der Ratengleichungstheorie

(3.5) oder der quantenmechanischen Rechnung (9.5) vor dem Exponentialfaktor erscheint, multipliziert mit γ_{ph} für die Größenordnung der Linienbreite. Wir setzen dementsprechend

$$|\nu_{23}^{(\omega_0)}(z=0)|^2 / \gamma_{ph}^2 = \frac{\kappa}{NA \gamma_{ph}}, \quad (11.4)$$

wofür wir wie in Abschnitt 3.2 den Wert 3.6×10^{-9} einsetzen. Alle Rechnungen werden im folgenden auch für $\frac{1}{16}$ und das 4 fache dieses Wertes durchgeführt, um den Einfluß zu zeigen, den die Wahl der fiktiven Eingangsintensität auf die Ergebnisse hat. Während die Intensität des fiktiven Eingangssignals durch (11.4) festgelegt ist, wird dessen Frequenz ω_0 als freier Parameter angesehen. Dieser Parameter ω_0 wird nun variiert und jeweils die sich am Ausgang des Verstärkers ergebende Intensität $I(\omega_0)$ berechnet. Das Verhältnis $I(\omega_0)/\gamma_{ph}$ wird dann innerhalb der geschätzten Linienbreite γ_{ph} als Maß für die wirkliche, im physikalischen Experiment auftretende spektrale Leistungsdichte des Ausgangssignals betrachtet.

Man kann dem beschriebenen Modell die anschauliche Vorstellung zugrundelegen, daß die Quantenfluktuationen für jeden einzelnen Lauf eines Verstärkerexperiments nur jeweils eine Stokesfrequenz zum Anschwingen bringen. Diese Stokesfrequenz ω_0 schwankt dann von Lauf zu Lauf des Experiments unter konstanten äußeren Bedingungen statistisch gleichverteilt innerhalb der geschätzten Linienbreite γ_{ph} . Mittelt man dann über eine große Zahl von Läufen des Verstärkerexperiments, erhalte genau die mit dem hier diskutierten Modell berechneten Daten.

Der Vorteil dieses Modells liegt darin, daß von vorneherein keine kohärenten Wechselwirkungen zwischen verschiedenen Frequenzen auftreten und daher die in Abschnitt 11.1 beschriebene Näherungsmethode exakt gilt. In dieser Arbeit wurde die beschriebene Modellrechnung für die drei bereits in Kapitel 10 benutzten Parameterkombinationen (10.1) durchgeführt. Das Ergebnis ist schnell zusammengefaßt: Wählt man die fiktive Eingangsfrequenz ω_0 nicht allzuweit vom Zentrum der Verstärkung entfernt, stimmen sowohl die erhaltenen Werte für die Dichtematrixelemente als auch die Intensitätswerte recht gut mit den Ergebnissen der Simulationsrechnungen in Kapitel 10 überein. In Abb. 29 ist ein Plot für die erhaltenen Dichtematrixelemente wiedergegeben, den man mit Abb. 24 vergleichen kann. Für die spektrale Dichte ist die Übereinstimmung, was den Bereich der gesättigten Verstärkung angeht, sehr viel schlechter. Die in Abb. 30 wiedergegebene Modellrechnung zeigt eine sehr viel geringere Variation von $I(\omega_0)/\gamma_{ph}$ bezüglich ω_0 , als

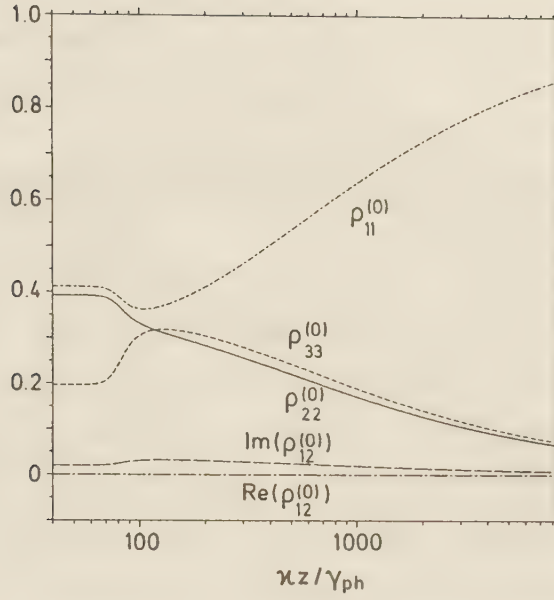


Abb. 29: Die Dichtematrix-Frequenzkomponenten $\rho_{33}^{(0)}$, $\rho_{12}^{(0)}$, $\rho_{33}^{(0)}$ und $\rho_{12}^{(0)}$ für ein monochromatisches Eingangssignal der Größe $|\nu_{23}^{(\omega_0)}(z=0)|^2 / \gamma_{ph}^2 = 3.6 \times 10^{-9}$. Parameterwerte $|\nu_{21}| = 1$, $\Delta = 0$, $\delta = 0$, $\omega_0 = 0$.

sie die aus den Simulationsrechnungen in Kapitel 10 erhaltene spektrale Leistungsdichte $G(\omega)$ bezüglich ω aufweist. Dieses Ergebnis hängt auch kaum noch von der Wahl der fiktiven Eingangsamplitude $|\nu_{23}^{(\omega_0)}(z=0)|$ ab, wie man aus Abb. 30 erkennt. Ein Einschluß des Faktors β aus Formel (9.5) etwa, der für die hier zur Debatte stehenden Fälle angenähert den Wert 2 hat, würde hier nicht viel ausmachen. Zur Erklärung dieser Abweichung kann man davon ausgehen, daß im Anfang des Verstärkungsprozesses die vom Pumplaser erzeugte Inversion Hauptquelle der Verstärkung ist. Das anwachsende Stokesfeld vermindert die Inversion und bremst damit sein eigenes Anwachsen in dem Maße, in dem es an Intensität zunimmt. Im hier geschilderten vereinfachten Modell steht auch einer hinsichtlich der Verstärkung ungünstig gestellten Frequenz ω_0 die volle vom Pumplaser erzeugte Inversion zur Verfügung. So wird sie zwar im Anfang langsamer wachsen; da aber niemand anders als sie selbst ihr die Inversion wegnehmen kann, wird sie schließlich fast auf die gleiche Intensität anwachsen wie in einem anderen Lauf der Rechnung eine genau auf bestmögliche Verstärkung abgestimmte Frequenz. In einem realen Experiment

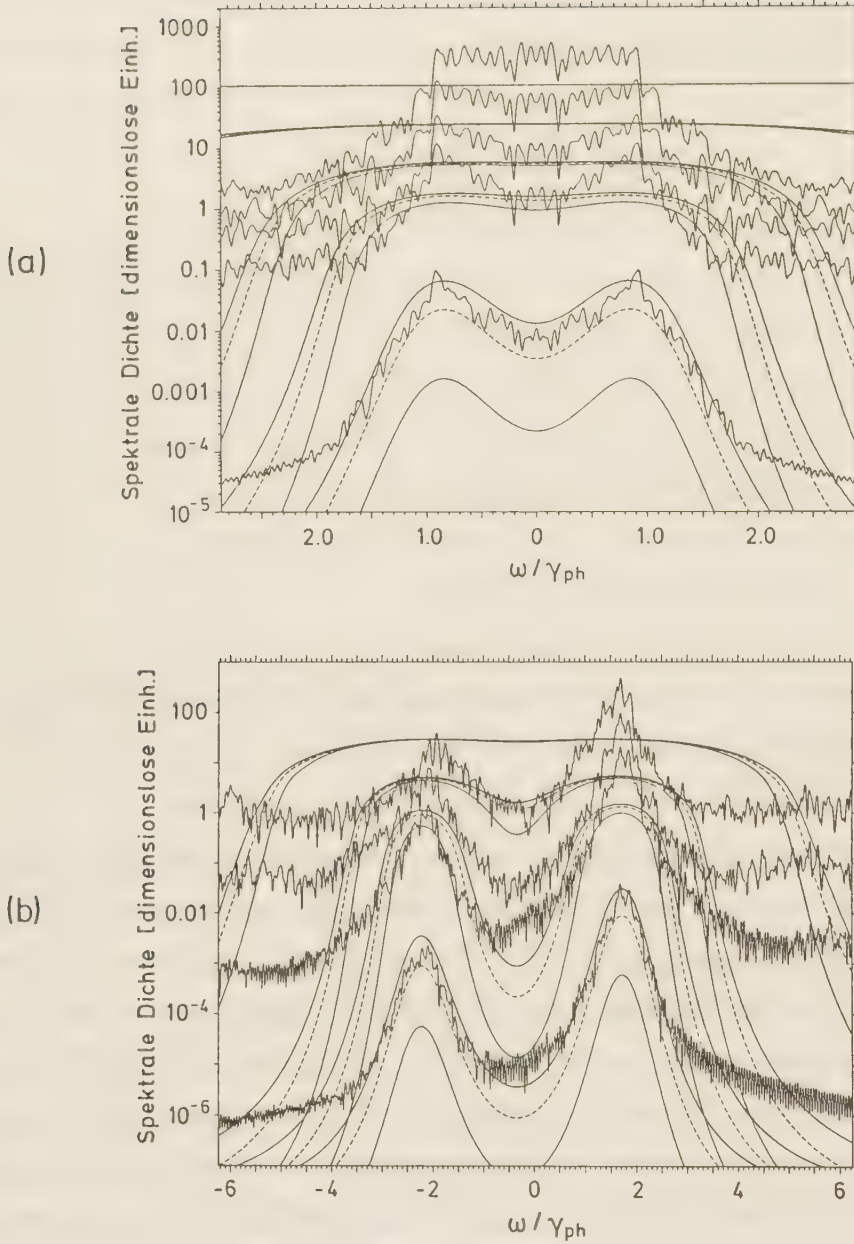


Abb. 30: Spektrale Leistungsdichte im stationären Fall für — von unten nach oben — $\kappa z / \gamma_{ph}$ -Werte von 64, 128, 256, 1024 sowie — nur in Bild (a) — 8192. Für jedes $\kappa z / \gamma_{ph}$ ist eingezeichnet: als gestrichelte Linie das Verhältnis $I(\omega_0) / \gamma_{ph}$ für ein monochromatisches Eingangssignal mit $|\nu_{23}^{(\omega_0)}(z=0)|^2 / \gamma_{ph}^2 = 3.6 \times 10^{-9}$. Darunter und darüber als glatte durchgezogenen Linie dasselbe Verhältnis für $\frac{1}{16}$ und das 4 fache des eben genannten Zahlenwertes. Als schnell schwankende fluktuierende Linien sind ferner die bereits in Abb. 26 gezeigten Ergebnisse der Simulationsrechnungen wiederholt, damit man besser vergleichen kann. (a) $|\nu_{21}| = \gamma_{ph}$, $\Delta = 0$ (b) $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\Delta = 0.5\gamma_{ph}$.

oder in der im Kapitel 10 beschriebenen Simulationsrechnung ist das nicht möglich, da dort die besser gestellten Frequenzen, die anfangs schneller anwachsen, den schlechter gestellten die Inversion wegnehmen.

11.3 Vereinfachtes Modell für die Koexistenz mehrerer Stokesfrequenzen

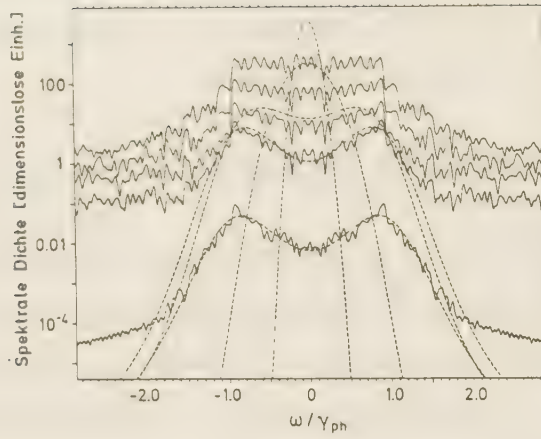
Um der im letzten Abschnitt vernachlässigten Konkurrenz der verschiedenen Stokesfrequenzen im Verstärker besser Rechnung tragen zu können, sollen im folgenden all diese Frequenzen gleichzeitig in die Rechnung einbezogen werden. Um die Verhältnisse trotzdem übersichtlich zu halten, wird jedoch die kohärente Wechselwirkung zwischen ihnen vernachlässigt. Die resultierenden Gleichungen sind bereits in Abschnitt 11.1 hergeleitet worden. Die benötigte Anfangsbedingung wird ähnlich wie in Kapitel 10 im oberen Teil des linearen Bereichs an dem durch $\kappa z_0/\gamma_{ph} = 50$ definierten Punkt z_0 vorgegeben. Diskretisiert man die spektrale Dichte (9.5) unter Verwendung genügend vieler äquidistanter Frequenzen ω_k , $k = 1, 2, 3, \dots$ im Abstand $\Delta\omega \ll \gamma_{ph}$, hat man

$$|\nu_{23}^{(\omega_k)}(z_0)|^2 = \frac{\kappa}{NA} \frac{\Delta\omega}{2\pi} \beta(\omega_k) \left[e^{2z \operatorname{Re}[\alpha(\omega_k)]} - 1 \right].$$

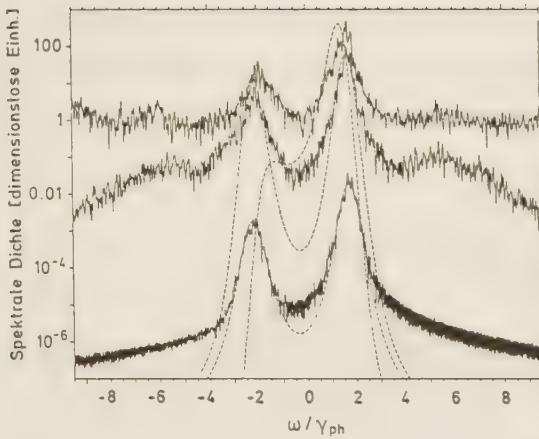
Mit diesen Anfangswerten führt das Differentialgleichungssystem (11.3) auf Dichtematrixelemente und Stokesintensitäten, die noch besser mit den Ergebnissen der Simulationsrechnungen in Kapitel 10 übereinstimmen, als dies für das im vorigen Abschnitt behandelte Modell eines monochromatischen Stokesfeldes der Fall war. Die spektrale Leistungsdichte kann man bei dem hier benutzten Verfahren nach einem einzigen Computerlauf direkt als Energie pro Frequenzintervall aus den $|\nu_{23}^{(\omega_k)}|^2$, $k = 1, 2, 3, \dots$, ablesen

$$G(z, \omega_k) = 2 \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{\hbar}{\mu_{23}} \right)^2 \frac{2\pi}{\Delta\omega} |\nu_{23}^{(\omega_k)}(z)|^2.$$

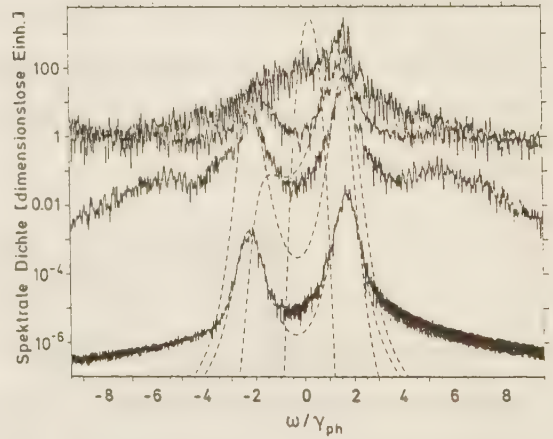
Die Resultate sind in Abb. 31 dargestellt. Sie stimmen offenbar bis weit in den nichtlinearen Bereich hinein recht gut mit den Ergebnissen der Simulationsrechnungen aus Kapitel 10 überein. Da wir kohärente Wechselwirkungsprozesse zwischen verschiedenen Stokesfrequenzen ausdrücklich vernachlässigt haben, kann das hier geschilderte Modell natürlich keine Vielfachen der Differenzfrequenz zwischen den Stokeslinien liefern, wie sie in Abb. 26d markiert sind. Auch fallen die Spektren an



(a)



(b)



(c)

Abb. 31: Spektrale Leistungsdichte im stationären Fall, bestimmt mit dem in Abschnitt 10.3 beschriebenen Verfahren (gestrichelte Linien), verglichen mit den Ergebnissen der Simulationsrechnungen aus Kapitel 10 (durchgezogene Linien). (a) $|\nu_{21}| = \gamma_{ph}$, $\Delta = 0$. Die effektiven Verstärkerlängen $\kappa z / \gamma_{ph}$ betragen, jeweils nach zunehmender Peakhöhe geordnet, 64, 128, 256, 1024 und 8192. (b) $|\nu_{21}| = 2\gamma_{ph}$, $\Delta = 0.5\gamma_{ph}$. Die effektiven Verstärkerlängen $\kappa z / \gamma_{ph}$ betragen, jeweils nach zunehmender Peakhöhe geordnet, 64, 256 und 1024. (c) wie Bild b), aber mit zusätzlich eingezeichneten Linien für $\kappa z / \gamma_{ph} = 8192$.

den Flanken etwas schneller ab, da sie nicht mit dem Absolutquadrat der Fouriertransformierten der Abschnidefunktion (10.4) gefaltet wurden, wie wir das bei den gestrichelten Linien in Abb. 26 a–c getan hatten.

Für sehr große Werte von $\kappa z / \gamma_{ph}$ ist die Übereinstimmung weniger gut. Hier liefert die vereinfachte Modellrechnung eine immer stärkere Konzentration der Stokesenergie auf einen einzigen Peak in der Mitte zwischen den beiden ursprünglichen Stokeslinien. In all diesen Fällen überzeichnet die Modellrechnung die wirkliche Tendenz; wo nach den Simulationsrechnungen in Kapitel 10 nur eine zögernde Auffüllung der Einsattelung zwischen den Starklinien zu beobachten war, konzentriert sich nach dem vereinfachten Modell bald der Großteil der gesamten Stokesenergie. Offenbar läßt die vereinfachte Modellrechnung der freien Konkurrenz der verschiedenen Stokesfrequenzen um die vom Pump laser erzeugte Inversion derart freies Spiel, daß schließlich nur noch die am besten verstärkte Frequenz übrigbleibt.

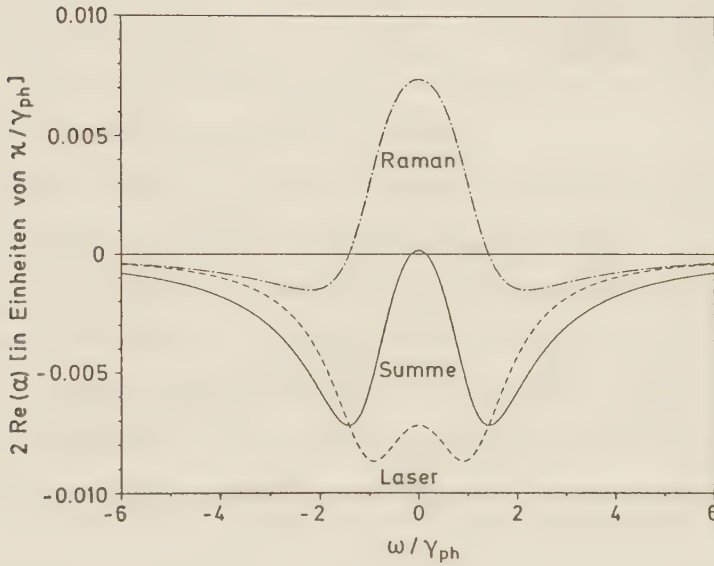


Abb. 32: Frequenzabhängiger Intensitätsverstärkungs koeffizient, gegeben durch den zweifachen Realteil des Ausdrucks (9.2) für α bzw. durch die eckige Klammer in (11.3). Auswertung der diesbezüglichen Formeln für $|\nu_{21}| = \gamma_{ph}$, $\Delta = 0$ und die für $\kappa z / \gamma_{ph} = 8192$ in Abb. 24 dargestellten Werte für Besetzungszahlen und atomare Kohärenz. Laseranteil, Ramananteil und Gesamtverstärkung getrennt aufgetragen.

Zum Schluß soll noch gezeigt werden, wie die Auffüllung der Mitte zwischen den ursprünglichen Starklinien, die ja in gemäßigter Form auch in Abb. 26 zu sehen ist, im vereinfachten Modell zustandekommt. Man geht dazu von den mittleren Dichtematrixelementen aus, die im vereinfachten Modell und in der Simulationsrechnungen von Kapitel 10, siehe Abb. 24 und Abb. 29, nahezu identische Werte haben. Für

kleine $\kappa z/\gamma_{ph}$ hat man eine so stark positive Inversion, daß hier die Laserverstärkung, ausgedrückt durch den zu $(\rho_{22}^{(0)} - \rho_{33}^{(0)})$ proportionalen Term in Formel (11.3), zu zwei ausgeprägten Maxima bei den beiden Starkkomponenten führt. Für größere $\kappa z/\gamma_{ph}$ geht die Inversion aufgrund der steigenden Stokesintensität zurück und wird schließlich sogar negativ. Damit erhält man auch eine negative Laserverstärkung und für die Frequenzen, für die man bei kleinen $\kappa z/\gamma_{ph}$ eine hohe Verstärkung hatte, bekommt man jetzt starke Absorption. Wie man in Abb. 32 erkennt, bleibt nur dort ein wenig Verstärkung übrig, wo die Absorption des Laserterms ihr Minimum hat, also genau in der Mitte zwischen den ursprünglichen Starklinien.

Es ist klar, daß eine Theorie, in die nur die Absolutquadrate $|\nu_{23}^{(\omega_k)}|^2$ der Fourieramplituden eingehen, die Entstehung der in Abb. 23 gezeigten Spikes nicht erklären kann, da die Entstehung solcher Spikes die Ausbildung einer Korrelation zwischen den Phasen erfordert.

Schlußbemerkungen und Ausblick

Ziel der vorliegenden Arbeit war es, Methoden aufzuzeigen, mit denen man Raman- und Hyper-Raman-Streuung auch im Bereich intensiver, annähernd resonanter Anregung korrekt beschreiben kann. Am Ende soll nun noch einmal Bilanz gezogen werden, was bei diesem Vorhaben erreicht worden ist und was auf diesem Gebiet noch zu tun bleibt.

Am Beginn dieser Arbeit stand ein einfaches systematisches Verfahren, mit dem sich die Dynamik atomarer Mehrniveausysteme unter der Einwirkung ein oder mehrerer optischer Felder auch im Bereich von Sättigungserscheinungen störungstheoretisch beschreiben läßt. Obwohl in dieser Arbeit in erster Linie zur Beschreibung des Hyper-Raman-Effekts benutzt, könnte dieses Verfahren auch bei vielen anderen Fragestellungen von Nutzen sein. Wünschenswert wäre es, Kontinuumszustände in geeigneter Form einzubeziehen, um so beispielsweise Mehrphotonenionisationsprozesse auf diese Weise beschreiben zu können.

Im weiteren Verlauf der Arbeit wurden dann die Dichtematrixgleichungen für Hyper-Raman-Effekt und Vierwellenmischung hergeleitet. In ihrer semiklassischen Form wurden sie zunächst verwendet, um reale experimentelle Anordnungen mit Pulsanregung zu beschreiben. Es stellte sich dabei heraus, daß die für ein klassisches monochromatisches Stokesfeldes berechnete Kleinsignalverstärkung im wesentlichen durch die Inversion der am Stokesübergang unmittelbar beteiligten Niveaus bestimmt wird und daß parametrische Prozesse hier keinen merklichen Einfluß ausüben.

Um die spontanen Prozesse korrekt berücksichtigen zu können, die bei den Experimenten den Aufbau des Stokesfeldes einleiten, war es nötig, im weiteren Verlauf der Arbeit zu einer voll quantenmechanischen Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Atomen und Strahlungsfeld überzugehen. Die Beschreibung wurde dabei gleichermaßen für den gewöhnlichen Raman- wie für den Hyper-Raman-Effekt formuliert. Um die Heisenberggleichungen für die Feldoperatoren zunächst im Bereich kleiner Stokesfelder in übersichtlicher Form lösen zu können, erwiesen sich vereinfachte Modellannahmen als notwendig. Dabei lag es nahe, jenseits eines bestimmten Zeitpunkts $\tau = 0$ die Werte für Pumpfeld sowie Inversion und pumpfeldinduzierte atomare Kohärenz als zeitlich konstant vorauszusetzen. Um einen Eindruck von der Dynamik von Einschwingvorgängen in einem solchen System zu bekommen, wurde

das Stokesfeld vor dem Zeitpunkt $\tau = 0$ zu Null angenommen. Bei der Untersuchung der Greensfunktionen, die in diesem Modell den Feldaufbau beschreiben, wurden analytische Darstellungen sowohl für die räumlich Laplacetransformierten als auch für die zeitlich Fouriertransformierten dieser Funktionen gefunden. Damit wurden dann Intensitäten, Spektren und Energieverteilungen des Stokeslichts berechnet. Dabei zeigten sich deutlich die durch den dynamischen Starkeffekt bedingten Unterschiede gegenüber derjenigen Art des Feldaufbaues, wie er von der Superfluoreszenz und der nichtresonanten Ramanstreuung her bekannt ist. Im letzten Teil der Arbeit wurde schließlich auch der Bereich gesättigter Stokesverstärkung behandelt und die Entwicklung von Intensitäten, Spektren, Intensitäts- und Energieverteilungen untersucht. Immer wurde jedoch für $\tau > 0$ an der zeitlichen Konstanz des vom Pumpfeld herrührenden Anteils der atomaren Anregung festgehalten.

Man könnte daran denken, von dieser Bedingung abzugehen, um beispielsweise reale pulsförmige Anregungsverläufe adäquat behandeln zu können. Allerdings verlieren dann die den Feldaufbau beschreibenden Greensfunktionen ihre Zeittranslationsinvarianz, und die zugehörigen Laplacetransformierten lassen sich im allgemeinen nicht mehr analytisch darstellen. Als Untersuchungsmethode käme daher vor allem die direkte Simulation der atomaren Langevingleichungen zusammen mit den Feldausbreitungsgleichungen in Frage, wobei die Rauschoperatoren durch Zufallszahlen dargestellt werden, nachdem man sich auf Normalordnung aller Größen festgelegt hat. Dieses für den Fall der Superfluoreszenz bereits bekannte Verfahren erlaubt im Prinzip die einheitliche Behandlung des linearen und des nichtlinearen Verstärkungsbereichs. Allerdings ist das Verfahren bereits bei geringen Genauigkeitsansprüchen sehr rechenintensiv. Da hier naturgemäß erheblich mehr freie Parameter eingehen als in unser idealisiertes Modell, ist eine sehr genaue Anpassung an die Daten der interessierenden Experimente nötig. Von den Experimentatoren braucht man dabei vor allem genauere Messungen zur Wirkung diverser konkurrierender Effekte, die in realen Apparaturen die Entstehung der Stokesstrahlung begleiten.

Mit geringerem numerischen Aufwand, als er angesichts der großen zeitabhängigen Starkverschiebungen beim Hyper-Raman-Effekt erforderlich ist, läßt sich der gewöhnliche Raman-Effekt im Bereich nahezu resonanter Anregung mit der skizzierten Methode behandeln. Ist dabei die Phasenrelaxationszeit (die auch den Aufbau des Stokesfeldes unter konstanten äußeren Bedingungen bestimmt) erheblich kürzer

als die Dauer des Pumpimpulses, können während des Pumpfeldaufbaus sowohl das Pumpfeld als auch der vom Pumpfeld herrührende Anteil der atomaren Anregung als konstant angesehen werden. Im Bereich linearer Stokesverstärkung kann man daher die in der vorliegenden Arbeit für den stationären Fall hergeleiteten Resultate ohne weiteres übernehmen. Man hat lediglich die semiklassisch zu berechnenden Werte für Inversion und pumpfeldinduzierte atomare Kohärenz in die erhaltenen Formeln einzusetzen. Ob man jedoch auch im nichtlinearen Bereich für die Pulsanregung zu ähnlichen Ergebnissen kommt wie wir in unserer Arbeit für den stationären Fall, ist nicht von vorneherein klar. Sollte dies der Fall sein, könnte es sich beispielsweise lohnen, bei den Experimenten einmal nach Spikes im beobachteten Stokes-Ausgangssignal zu suchen.

Eine der mehr theoretisch orientierten offengebliebenen Fragen betrifft die Natur der in der vorliegenden Arbeit gefundenen Spikes. Es wäre in diesem Zusammenhang interessant, herauszufinden, ob und unter welchen Bedingungen das für Raman- und Hyper-Raman-Effekt maßgebliche nichtlineare Gleichungssystem möglicherweise Solitonenlösungen besitzt. Eine für die Anwendung auf die Experimente sehr wichtige Frage betrifft den Einfluß von Pumpfeldfluktuationen, wie sie etwa in der endlichen Bandbreite des eingestrahnten Laserlichtes zum Ausdruck kommen, auf die Ergebnisse. Im Prinzip lassen sich auch diese Einflüsse in die oben vorgeschlagene Simulationsrechnung einbringen; jedoch bringt dies neue freie Parameter ins Spiel, die sich experimentell nicht immer leicht bestimmen lassen. Weiter erhebt sich die Frage nach der Tragfähigkeit der eindimensionalen Näherung, wie sie der Feldausbreitung im aktiven Medium zugrunde gelegt wurde. Für den Fall der Superfluoreszenz ist bekannt, daß diese Näherung zu unrealistischen Vorhersagen für die Pulsform des entstehenden Signals führen kann. Auch hier ist ein direktes Angehen dieser Frage leicht mit einem unverhältnismäßig hohen Rechenaufwand verbunden, und vielleicht muß man warten, bis für solche Fragestellungen neue Konzepte gefunden sind.

Referenzen

1. R. Loudon, The quantum theory of light, 2nd ed., Clarendon Oxford 1983
2. L. Allen, J.H. Eberly, Optical Resonance and Two-Level Atoms, John Wiley, New York, 1975
3. R.L. Shoemaker; Laser and Coherence Spectroscopy, edited by J.I. Steinfeld, Plenum Press, New York, 1978; p.197
4. R.G. Brewer, E.L. Hahn, Phys.Rev. A 11, 1641 (1975)
5. M.S. Feld; Les Houches, Frontiers in Laser Spectroscopy, Vol. I, edited by R. Balian, S. Haroche, S. Liberman; p.203
6. B.W. Shore, J. Ackerhalt, Phys. Rev. A 15, 1640 (1977)
7. G. Oriols, Nuovo Cimento 53B, 1(1979)
8. F.T. Hioe, J.H. Eberly, Phys.Rev.Lett. 47, 838 (1981)
9. L. Kancheva, D. Pushkarov, S. Rashev, J. Phys. B 14, 573 (1981)
10. P.M. Radmore, P.L. Knight, J. Phys. B 15, 561 (1982)
11. G.S. Agarwal, Opt. Commun. 31, 325 (1979)
12. D.C. Hanna, M.A. Yuratich, D. Cotter, Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules, Springer-Verlag Berlin 1979
13. M. Takatsuji, Phys.Rev. A 11, 619 (1975)
14. D. Grischkowski, M.M. Loy, P.F. Liao, Phys.Rev. A 12, 2514 (1975)
15. A. Guzman de Garcia, P. Meystre, M. Sargent III, Opt. Commun. 43, 364 (1982)
16. A. Messiah, Quantum mechanics, Vol. II, North-Holland, Amsterdam 1970; Chapter 17
17. Y.R. Shen, The Principles of Nonlinear Optics, John Wiley, New York 1984
18. F. Bloch, A.J.F. Siegert, Phys.Rev. A 57, 522 (1940)
19. J.H. Shirley, Phys.Rev. 138, B979 (1965)
20. C.V. Raman, Indian J. Phys. 2, 387 (1928); C.V. Raman, U.S. Krishnan, Nature 121, 501 (1928)
21. R.W. Terhune, P.D. Maker, C.M. Savage, Phys. Rev. Lett. 14, 681 (1965)
22. D.Y. Kim, P.D. Coleman, IEEE J. QE-16, 300 (1980)
23. Q.H.F. Vrehen, H.M.J. Hikspoors, Opt. Commun. 21, 127 (1977)
24. D. Cotter, D.C. Hanna, W.H.W. Tuttlebee, M.A. Yuratich, Opt. Commun. 22, 190 (1977)
25. J. Reif, H. Walther, Appl. Phys. 15, 361 (1978); J. Reif, Dissertation Universität München 1981
26. S. Dinev, Private Mitteilung 1983
27. J.A. Hermann, B.V. Thompson, J. Phys. B14, 2961 (1981)
28. W.H. Louisell, P. Meystre, Phys. Rev. A 23, 1015 (1981)

29. M.S. Feld; Les Houches, Frontiers in Laser Spectroscopy, Vol. I, eds. R. Balian, S. Haroche, S. Liberman, North-Holland Amsterdam 1977; p.203
30. C.E. Moore, Atomic Energy Levels, Vol.II und III, National Bureau of Standards NRSDS-NBS 35 (1971)
31. Atomic Transition Probabilities, Vol. II, Hrg. W.L. Wiese, M.W. Smith, B.M. Miles, National Bureau of Standards NRSDS-NBS 22 (1969)
32. P. Esherick, Phys.Rev. A 15, 1920 (1977)
33. C.H. Corliss, W.H. Bozmann, Experimental Transition Probabilities for Spectral Lines of Seventy Elements, National Bureau of Standards Monograph 53 (1962)
34. W.L. Wiese, G.A. Martin; Wavelengths and Transition Probabilities for Atoms and Atomic Ions, National Bureau of Standards NSRDS-NBS 68 (1980); Part II
35. N.P. Penkin, L.N. Shabanova, Optics and Spectroscopy 12, 1 (1962)
36. A. Eberhagen, Z. Physik 143, 392 (1955); U. Brinkmann, Z. Physik 228, 440 (1969)
37. F.M. Kelly, T.K. Koh, M.S. Mathur, Can. J. Phys. 52, 795 (1974)
38. A.L. Osherovich, Ya.F. Verolainen, S.A. Pulkin et al., Opt. Spectrosc. 46, 243 (1979)
39. W. Gornik, Z. Physik A 283, 231 (1977)
40. V.A. Zilitis, Opt. Spectroscopy 29, 438 (1970)
41. T.M.Helliwell, Phys.Rev. 135, A325 (1964)
42. D.R. Bates, A. Damgaard, Phil. Trans. R. Soc. A 242, 101 (1949)
43. H.B. Bebb, Phys. Rev. 149, 25 (1966)
44. G.K. Oertel, L.P. Shomo, Astrophys. Journal, Supplement Series 16, 175 (1968)
45. H. Eicher, IEEE J. QE-11, 121 (1975)
46. W. Demtröder Z. Physik 166, 42 (1962)
47. Landold-Börnstein, Zahlenwerte und Funktionen, 6. Aufl., Bd.I, 1.Teil, Springer Berlin 1950; p.362
48. T.F. Gallagher, S.A. Edelstein, R.M. Hill, Phys. Rev. Lett. 35, 644 (1975)
49. J. Huennekens, A. Gallagher, Phys. Rev. A 27, 1851 (1983)
50. N.P.Penkin, L.N. Shabanova, Opt. Spectrosc. 26, 191, (1969)
51. K.G. Popov, V.P. Ruzov, Opt. Spectrosc. 48, 372 (1980)
52. J.P. Woerdman, Opt. Commun. 28, 69 (1979)
53. J.M. Farr, W.R. Hindmarsh, J. Phys. B 4, 568 (1971)
54. S.Y. Chen, S.Y. Wang, Acta Physica Polonica A54, 721 (1978)
55. A. Flusberg, T. Mossberg, S.R. Hartmann, Opt. Commun. 24, 207 (1978)
56. R. Bonifacio, F.A. Hopf, P. Meystre, M.O.Scully Phys. Rev. A 12, 2568 (1975)

57. A. Guzman de Garcia, Dissertation, LMU München 1984
58. W.H. Louisell, Quantum Statistical Properties of Radiation, John Wiley, London 1973
59. A. Guzman de Garcia, P. Meystre, R.R.E. Salomaa, Phys. Rev. A 32, 1531 (1985)
60. E.B. Treacy, Physics Lett. 27A, 421 (1968)
61. D. Grischkowski, M.M.T. Loy, Phys. Rev. A 12, 1117 (1975)
62. M.M.T. Loy, Phys. Rev. Lett. 41, 473 (1978)
63. J. Oreg, F.T. Hioe, J.H. Eberly, Phys. Rev. A 29, 690 (1984)
64. M. Sargent III, P. E. Toschek, H.G. Danielmeyer, Appl. Phys. 11, 55 (1976); M. Sargent III, P. E. Toschek, Appl. Phys. 11, 107 (1976); M. Sargent III, Phys. Rep. 43, 223 (1978)
65. L.W. Hillman, R.W. Boyd, C. R. Stroud Opt. Lett. 7, 426 (1982)
66. M. Sargent III, D. A. Holm, M.S. Zubairy Phys. Rev. A 31, 3112 (1985);
67. H. Haken, Laser Theory, Springer-Verlag, Berlin 1984
68. R. Glauber, F. Haake, Phys. Lett. 68A, 29 (1978)
69. F. Haake, H. King, G. Schröder, J. Haus, R. Glauber Phys. Rev. A 20, 2047 (1979)
70. F. Haake, J.W. Haus, H. King, G. Schröder, R. Glauber Phys. Rev. A 23, 1322 (1981)
71. D. Polder, M.F.H. Schuurmans, Q.H.F. Vrehen, Phys. Rev. A 19, 1192 (1979)
72. Q.H.F. Vrehen, H.M. Gibbs; Dissipative Systems in Quantum Optics, edited by R. Bonifacio, Springer Berlin 1982; p.111
73. J. Mostowski, M. G. Raymer, Opt. Commun. 36, 237 (1981)
74. M. G. Raymer, J. Mostowski, Phys. Rev. A 24, 1980 (1981)
75. G. Doetsch, Handbuch der Laplacetransformation, 3 Bde., Verlag Birkhäuser, Basel 1950
76. F. Oberhettinger, L. Badii, Tables of Laplace Transforms, Springer Berlin 1973
77. G.E. Roberts, H. Kaufman, Table of Laplace Transforms, W.B. Saunders, Philadelphia 1966
78. H. Bateman, Tables of Integral Transforms, Vol. 1, McGraw-Hill, New York 1954
79. W. Gröbner, N. Hofreiter, Integraltafel, 2. Teil, 5. Aufl., Springer, Wien 1973
80. F.A. Hopf, P. Meystre, Phys. Rev. A 12, 2534 (1975); F.A. Hopf, P. Meystre, D.W. McLaughlin, Phys. Rev. A 13, 777 (1976)
81. B.R. Mollow, Phys. Rev. 188, 1969 (1969)

82. C. Cohen-Tannoudji; Les Houches 1975, *Frontiers in Laser Spectroscopy*, edited by R. Balian, S. Haroche, S. Liberman, North-Holland Amsterdam 1977; Vol.1; p.3
83. J. D. Cresser, J. Häger, G. Leuchs, M. Rateike, H. Walther; *Dissipative Systems in Quantum Optics*, edited by R. Bonifacio, Springer Berlin 1982; p.21
84. J. D. Murray, *Asymptotic analysis*, Clarendon Press Oxford 1974
85. K.S. Crumb, *J. of the Association for Computing Machinery* 23, 89 (1976)
86. M.C. Wang, G.E. Uhlenbeck, *Rev. Mod. Phys.* 17, 323 (1945)
87. M. Born, E. Wolf, *Principles of Optics*, 2th ed., Pergamon Oxford 1964
88. N. Wiener, *Acta Math.* 55, 117 (1930)
89. J.H. Eberly, K. Wódkiewicz, *J. Opt. Soc. Am.* 67, 1252 (1977)
90. G. Schröder, F. Haake, M. Lewenstein K. Rzazewski, *Optics Commun.* 39, 194 (1981)
91. L. Mandel, E. Wolf, *Rev. Mod. Phys.* 37, 231 (1965)
92. M.G. Raymer, K. Rzazewski, J. Mostowski, *Optics Letters* 7, 71 (1982)
93. F. Haake, *Physics Lett.* 90A, 127 (1982)
94. N. Fabricius, K. Nattermann, D. von der Linde, *Phys. Rev. Lett.* 52, 113 (1984)
95. K. Rzazewski, M. Lewenstein, M.G. Raymer, *Opt. Commun.* 43, 451 (1982)
96. K.E. Cahill, R.J. Glauber, *Phys. Rev.* 177, 1882 (1969)
97. M. Sargent III, M.O. Scully, W.E. Lamb Jr., *Laser Physics*, Addison-Wesley, London 1974
98. G. Hall, J.M. Watt, *Modern Numerical Methods for Ordinary Differential Equations*, Clarendon Press, Oxford 1976
99. M. Lewenstein, *Z. Phys. B* 56, 69 (1984)
100. I.A. Walmsley, M.G. Raymer, T. Sizer II, I.N. Duling III, J.D. Kafka, *Opt. Commun.* 53, 137 (1985)
101. J. Friedman, SLAC report, no. 176 (1974)
102. P.W. Milonni, J.R. Ackerhalt, H.W. Galbraith, *Phys. Rev. A* 28, 887 (1983)
103. F.Y.F. Chu, A.C. Scott, *Phys. Rev. A* 12, 2060 (1975)
104. K. Drühl, R.G. Wenzel, J.L. Carlsten *Phys. Rev. Lett.* 51, 1171 (1983)
105. J.L. Carlsten, D.C. MacPherson; *Optical instabilities*, Proc. Intern. Meeting on Instabilities and Dynamics of Lasers and Nonlinear Optical Systems, Rochester June 18-21 1985, edited by R.W. Boyd et al., Cambridge University Press, Cambridge 1986; p.337
106. J. Ackerhalt, Vortrag vom 14. 8. 1985 im Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Garching bei München

Danksagung

Zum Abschluß dieser Arbeit danke ich Herrn Prof. H. Walther für die Möglichkeit, diese Arbeit in der weltoffenen und stimulierenden Atmosphäre des Max-Planck-Instituts für Quantenoptik durchführen zu können, und für sein stetes Interesse am Fortgang der Arbeit.

Herrn Dr. P. Meystre danke ich für die Unterstützung, die er mir als Betreuer dieser Arbeit zuteil werden ließ, viele fruchtbare Anregungen und seine andauernde Bereitschaft zur Erörterung aller auftretenden Fragen.

Nicht zuletzt danke ich meinen Kollegen der Arbeitsgruppe Theoretische Quantenoptik für das gute Arbeitsklima und die vielen Diskussionen, die wesentlich zur Erweiterung des persönlichen Horizonts beitrugen.

LEBENS LAUF

Name: Hans-Georg von Garßen
Geburtsdatum: 5. Januar 1952
Geburtsort: Göttingen
Staatsangehörigkeit: deutsch
Familienstand: ledig

Bildungsweg

1958 – 1960 Grundschule in Göttingen

1960 – 1962 Grundschule in Bückeburg

1962 – 1970 Gymnasium Adolfinum in Bückeburg

1970 – 1981 Studium der Physik an der Technischen Universität Hannover.
Diplomarbeit bei Prof. H. Welling über „Quantenfluktuationen
in linearen Laserverstärkern“, Diplomprüfung 1977.

1982 – 1986 Promotion bei Prof. H. Walther und Dr. P. Meystre am Max-
Planck-Institut für Quantenoptik.

